

**INNOVATIVE DESINFEKTIONSVERFAHREN ZUR
BRAUCHWASSERGEWINNUNG IN DER DEZENTRALEN
ABWASSERBEHANDLUNG - ELEKTROLYSE UND UV/ELEKTROLYSE-
HYBRIDTECHNIK**

D I S S E R T A T I O N

zur Erlangung des akademischen Grades

Doctor rerum naturalium

(Dr. rer. nat.)

vorgelegt

der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften

der Technischen Universität Dresden

von

Dipl.-Chem. Daniela Haaken

geboren am 15.01.1980 in Cottbus

Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Eckhard Worch, Technische Universität Dresden
Prof. Dr. rer. nat. habil. Alexander Eychmüller, Technische Universität Dresden
Prof. Dr. Dr. habil. Fritz H. Frimmel, Karlsruher Institut für Technologie

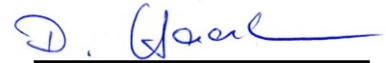
Dresden, 17.09.14

Übereinstimmungserklärung

Die Übereinstimmung dieses Exemplars mit dem Original der Dissertation zum Thema:

„*Innovative Desinfektionsverfahren zur Brauchwassergewinnung in der dezentralen Abwasserbehandlung - Elektrolyse und UV/Elektrolyse-Hybridtechnik*“ wird hiermit bestätigt.

Dresden, 07.05.15



Daniela Haaken

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als diese kenntlich gemacht worden. Bei der Auswahl und Auswertung des Materials sowie bei der Herstellung des Manuskriptes habe ich Unterstützungsleistungen von folgenden Personen erhalten:

.....

Weitere Personen waren an der geistigen Herstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich nicht die Hilfe eines oder mehrerer Promotionsberater(s) in Anspruch genommen. Dritte haben von mir weder unmittelbar noch mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde zum Zwecke der Promotion vorgelegt.

Ich bestätige, dass ich die Promotionsordnung der Fakultät Umweltwissenschaften der TU Dresden anerkenne.

Dresden, 17.09.14



Daniela Haaken

Danksagung

Ich bedanke mich bei Herrn Prof. Dr. Eckhard Worch für die Betreuung und Förderung dieser Arbeit sowie die wertvollen fachlichen Diskussionen und Anregungen.

Herrn Prof. Dr. Eychmüller sowie Herrn Prof. Dr. Dr. Frimmel danke ich sehr für die Übernahme des Zweit- bzw. Drittgutachtens.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. Viktor Schmalz sowie Herrn Dr. Thomas Dittmar für die große Unterstützung während der gesamten Promotionszeit. Ihre wertvollen Ratschläge und Anregungen haben wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Herrn Dr. Ilian von der Firma Bergmann Clean Abwassertechnik GmbH danke ich für die jahrelange sehr gute Zusammenarbeit und die interessanten Einblicke in verschiedene Feldversuche. Die Kooperation mit Herrn Dr. Ilian trug maßgeblich dazu bei, verschiedene Forschungsprojekte innerhalb meiner Promotionszeit realisieren zu können.

Mein Dank gilt ebenfalls Frau Manuela Junge für die Ausführung der mikrobiologischen Untersuchungen.

Des Weiteren gilt mein Dank Frau Heidi Franz sowie Frau Christel Grützner für ihre tatkräftige und verlässliche Unterstützung im Labor.

Mein herzlicher Dank gilt meiner Arbeitskollegin und Freundin Frau Christine Schmooch, die mir oftmals in inspirativen und herzerfrischenden Gesprächen angenehme Labor- und Bürotage bereitet hat.

Ich bedanke mich weiterhin bei allen anderen Mitarbeitern des Instituts für Wasserchemie für die Hilfsbereitschaft und Offenheit bei so manchen kleineren Problemen.

Schließlich gilt mein ganz besonderer Dank meinen geliebten Eltern und meinem wunderbaren Verlobten für die aufbauenden Worte in schwierigen Zeiten und die Unterstützung, durch die nicht nur mein Studium überhaupt erst möglich wurde.

INHALTSVERZEICHNIS

Tabellenverzeichnis

Abbildungsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis

Symbolverzeichnis

1. EINLEITUNG - MOTIVATION UND ZIELSTELLUNG	1
1.1 Globale Wasserkrise - Notwendigkeit eines nachhaltigen (integrierten)	
Wasserressourcenmanagements	1
1.2 Wiederverwendung von biologisch gereinigtem Abwasser	4
1.2.1 Meilensteine, Möglichkeiten, Potentiale	4
1.2.2 Nachhaltiges dezentrales Abwassermanagement - Kreislaufführung von	
häuslichem Brauchwasser	7
1.3 Aufgaben- und Zielstellung	11
2. GRUNDLAGEN UND LITERATURAUSWERTUNG	14
2.1 Qualitätsanforderungen für die Wiederverwendung von biologisch	
gereinigtem Abwasser	14
2.1.1 Hygienische Anforderungen - Pathogene, Indikatororganismen	15
2.1.2 Richtlinien, Normen und Rechtsvorschriften	18
2.2 Desinfektionsverfahren	21
2.2.1 UV-Desinfektion	24
2.2.1.1 Allgemeiner Überblick	24
2.2.1.2 Licht- und Dunkelreparatur von reversibel UV-geschädigten Bakterien	28
2.2.2 Elektrochemische Desinfektion	32
2.2.3 Verfahrenskombinationen	39
2.2.4. Forschungspotential zu elektrochemischen Desinfektionsverfahren und	
UV/Elektrolyse-Hybridverfahren im Rahmen der dezentralen Gewinnung von	
Brauchwasser	42
2.3 Literatur	45
3. PUBLIKATIONEN	58
3.1 Influence of operating conditions and wastewater-specific parameters on the	
electrochemical bulk disinfection of biologically treated sewage at boron-doped	
diamond (BDD) electrodes	58
3.2 Limits of UV disinfection: UV/electrolysis hybrid technology as a promising	
alternative for direct reuse of biologically treated wastewater	67

3.3 Disinfection of biologically treated wastewater and prevention of biofouling by UV/electrolysis hybrid technology: Influence factors and limits for domestic wastewater reuse.....	78
4. ZUSAMMENFASSUNG DER ERGEBNISSE UND DISKUSSION	88
5. AUSBLICK.....	95
6. VERZEICHNIS WEITERER PUBLIKATIONEN AUF DEM GEBIET DER DESINFEKTION VON BIOLOGISCH GEREINIGTEM ABWASSER ZUR GEWINNUNG VON BRAUCHWASSER.....	97

Tabellenverzeichnis

Das Tabellenverzeichnis bezieht sich auf die Kapitel 1, 2 und 4.

Tab. 1.1	Kriterien eines nachhaltigen Wasserressourcenmanagements	3
Tab. 1.2	Kategorien der Wiederverwendung von gereinigtem Abwasser	5
Tab. 2.1	Pathogene (Konzentration, Median-Infektionsdosis, Krankheiten) in unbehandeltem und biologisch gereinigtem Abwasser	15
Tab. 2.2	Mikrobiologische Qualitätsanforderungen an Brauchwasser in Abhängigkeit von der geplanten Nutzung	20
Tab. 2.3	Einteilung potentieller Verfahren zur Abwasserdesinfektion	21
Tab. 2.4	Bildungsreaktionen und Standardpotentiale elektrochemisch erzeugter und desinfizierend wirkender Oxidationsmittel in wässriger Lösung	35
Tab. 4.1	Bewertungsranking hinsichtlich praxisrelevanter Parameter für die UV- Desinfektion, elektrochemische Desinfektion und UV/Elektrolyse- Hybridtechnik	94

Abbildungsverzeichnis

Das Abbildungsverzeichnis bezieht sich auf die Kapitel 1, 2 und 4.

Abb. 1.1	Spezifischer Energieverbrauch des gesamten Wasserkreislaufs am Beispiel von Kalifornien	4
Abb. 1.2	Meilensteine in der Entwicklung der Rückkgewinnung und Wiederverwendung von Abwasser	6
Abb. 1.3	Schematische Darstellung eines dezentralen Abwassermanagements	8
Abb. 1.4	Desinfektion von biologisch gereinigtem häuslichem Abwasser zur Brauchwassergewinnung	11
Abb. 2.1	DNA-Reparatur durch Licht- und Dunkelreparaturmechanismen	28
Abb. 2.2	Diamantelektrodentypen: a) Dünnschicht-BDD-Elektroden; b) Partikel-BDD-Elektroden	33
Abb. 2.3	Arbeitsbereiche verschiedener Elektrodenmaterialien bis zur Erzeugung von H_2 und O_2	34
Abb. 2.4	Mögliche physikalisch-chemische Prozesse in der Reaktionsschicht vor der Elektrodenoberfläche	35

Abkürzungsverzeichnis

Das Abkürzungsverzeichnis bezieht sich auf die Kapitel 1, 2 und 4.

Abb.	Abbildung
AOPs	Weitergehende Oxidationsverfahren (Advanced Oxidation Processes)
AOX	Adsorbierbare Organisch Gebundene Halogene (Adsorbable Organically Bound Halogens)
ATV	Abwassertechnische Vereinigung e. V.
ATV-DVWK	Zusammenschluss von der Abwassertechnische Vereinigung e. V. und dem Deutschen Verband für Wasserwirtschaft und Kulturbau e. V.
BDD	Bordotierter Diamant
BSB ₅	Biochemischer Sauerstoffbedarf nach 5 Tagen
CIWP	Komitee für Indikatoren für Wasserbürtige Pathogene (Committee on Indicators for Waterborne Pathogens)
CSRIO	Staatliche Behörde Australiens für Wissenschaftliche und Industrielle Forschung (Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation)
CVD	Chemische Gasphasenabscheidung (Chemical Vapor Deposition)
DAPI	4',6-Diamidino-2-phenylindol
DALYs	Verlorene Lebensjahre durch vorzeitigen Tod und Verlust an Lebenszeit durch Behinderung oder Krankheit (Disability-Adjusted Life Years)
DIN	Deutsches Institut für Normung
DIBt	Deutsches Institut für Bautechnik
DNA	Desoxyribonukleinsäure (Deoxyribonucleic Acid)
DNP	Desinfektionsnebenprodukte
DOC	Gelöster Organischer Kohlenstoff (Dissolved Organic Carbon)
DWA	Deutsche Vereinigung für Wasserwirtschaft, Abwasser und Abfall e. V. (vormals ATV-DVWK)
EAOPs	Weitergehende Elektrochemische Oxidationsverfahren (Electrochemical Advanced Oxidation Processes)
<i>E. coli</i>	<i>Escherichia coli</i>
<i>E. faecalis</i>	<i>Enterococcus faecalis</i>
EN	Europäische Norm
EU	Europäische Union
EW	Einwohnerwert
FAO	Erährungs- und Landwirtschaftsorganisation der Vereinten Nationen (Food and Agriculture Organization)
GOM	Gesamtoxidantien
HPHT	Hochdruck-Hochtemperatur (High Pressure-High Temperature)

IPCC	Zwischenstaatliches Gremium für Klimaänderungen (Intergovernmental Panel on Climate Change)
IWRM	Integriertes Wasserressourcenmanagement (Integrated Water Resources Management)
k. A.	keine Angabe
LED	Licht-emittierende Diode (Light-Emitting Diode)
MOX	Mischoxid (Mixed Oxide)
MPN	Wahrscheinlichste Anzahl (Most Probable Number)
n. b.	nicht bestimmt
n. n.	nicht nachweisbar
Ox	Oxidationsmittel
QMRA	Quantitative Mikrobiologische Risikobewertung (Quantitative Microbial Risk Assessment)
Red	Reduktionsmittel
RNA	Ribonukleinsäure (Ribonucleic Acid)
RL	Richtlinie
SHE	Standardwasserstoffelektrode
THM	Trihalomethane (THMs: Trihalomethanes)
TOC	Gesamter Organischer Kohlenstoff (Total Organic Carbon)
TSS	Abfiltrierbare Stoffe (Total Suspended Solids)
u. a.	unter anderem
UN	Vereinte Nationen (United Nations)
US EPA	Umweltschutzbehörde der Vereinigten Staaten von Amerika (United States Environmental Protection Agency)
UNESCO	Organisation der Vereinten Nationen für Bildung, Wissenschaft und Kultur (United Nations Educational, Scientific and Cultural Organization)
UNEP	Umweltprogramm der Vereinten Nationen (United Nations Environment Programme)
v. a.	vor allem
WCED	Weltkommission für Umwelt und Entwicklung (World Commission on Environment and Development)
WERF	Stiftung für Wassenumweltforschung (Water Environment Research Foundation)
WHG	Wasserhaushaltsgesetz
WHO	Weltgesundheitsorganisation (World Health Organization)
z. B.	zum Beispiel
z. T.	zum Teil

Symbolverzeichnis

Das Symbolverzeichnis bezieht sich auf die Kapitel 1, 2 und 4.

c	Konzentration	mg L ⁻¹
E	Energieverbrauch	kWh m ⁻³
E _m	mittlere UV-Bestrahlungsstärke	W m ⁻²
E ₃₆₀	Lichtintensität bei 360 nm	Lux oder W m ⁻²
H	UV-Bestrahlungsdosis	J m ⁻²
j	Stromdichte	mA cm ⁻²
k	Geschwindigkeitskonstante	min ⁻¹
λ	Wellenlänge	nm
N ₅₀	Median-Infektionsdosis	-
Q _A	flächenspezifischer elektrischer Ladungseintrag	Ah cm ⁻²
Q _v	volumenspezifischer elektrischer Ladungseintrag	Ah L ⁻¹
t	Zeit: Versuchsdauer oder Nachwirk-/Kontakt-/Bestrahlungszeit	d oder Monate s oder min
T	Temperatur	°C

Kurzfassung

Nach Schätzung des Umweltprogramms der Vereinten Nationen (UNEP) werden im Jahr 2025 voraussichtlich 1,8 Milliarden Menschen in Ländern oder Regionen mit absolutem Wasserstress leben. Nicht nur in Regionen der ariden und semiariden Klimazone, sondern auch in schnell wachsenden Megastädten rund um den Globus erhöht sich der Druck auf die vorhandenen Wasserressourcen, was unter anderem durch ein verändertes Ernährungs- und Konsumverhalten (Erhöhung des Lebensstandards) verursacht wird. In den Schwellen- und Entwicklungsländern der semiariden und ariden Klimazone werden über 90 % des jährlichen Wasserverbrauchs zur Bewässerung landwirtschaftlicher Flächen aufgewendet, um die Ernährung der Bevölkerung sicherzustellen. Seit Beginn des 20. Jahrhunderts rückt daher die geplante/geregelte Wiederverwendung von gereinigtem Abwasser verstärkt in den Fokus eines nachhaltigen Wasserressourcenmanagements. Abwasser stellt hinsichtlich seiner Zusammensetzung (Nährstoffe P, N zur Bodendüngung) und seiner zuverlässigen, witterungsunabhängigen Verfügbarkeit eine wertvolle Ressource in jedem Haushalt dar. Durch die Etablierung eines sekundären Brauchwasserkreislaufs kann die Effizienz der Wassernutzung gesteigert werden. Deshalb fokussieren sich Forschungs- und Entwicklungsaktivitäten gegenwärtig mehr auf dezentrale und semizentrale Konzepte, da dessen Strukturen bessere Voraussetzungen zur Etablierung von Kreislaufsystemen liefern und sich Innovationen in der Abwassertechnik erheblich einfacher umsetzen lassen.

Generell orientieren sich die hygienischen Qualitätsanforderungen für die Abwasserwiederverwendung an der geplanten Nutzung. Diese wiederum sind anhand von unterschiedlichen Grenz- bzw. Richtwerten für z. B. Fäkalindikatorbakterien (z. B. Fäkalcoliforme: *E. coli*) in länderspezifischen Normen und Rechtsvorschriften geregelt. In Deutschland wird seit 2005 die Zusatzklasse +H im Kleinkläranlagenbereich nach den Grundsätzen des Deutschen Instituts für Bautechnik (DIBt) vergeben, wenn der Ablauf weniger als 100 Fäkalcoliforme (*E. coli*) pro 100 mL enthält. Dies ermöglicht die gefahrlose Versickerung des Abwassers in Karst- und Wasserschutzgebieten. Da Abwasser selbst nach mechanisch-biologischer Reinigung eine Vielzahl von Pathogenen enthält, sind gezielte Maßnahmen zu deren Reduzierung unabdingbar. Die Ansprüche an Desinfektionsverfahren zur Gewinnung von Brauchwasser sind durchaus komplex. So sollten diese über eine hohe und zuverlässige Desinfektionseffizienz bei geringer bzw. moderater Bildung von unerwünschten Desinfektionsnebenprodukten verfügen. Das erzeugte Brauchwasser sollte eine ausreichende Lagerfähigkeit aufweisen. Zudem sollte das Verfahren ohne externe (gelagerte) Chemikalien auskommen und technisch einfach, skalierbar, platzsparend und wartungsarm sowie unter Realisierung moderater Investitions- und Betriebskosten zu betreiben sein. Bestehende Verfahren zur dezentralen Abwasserdesinfektion basieren überwiegend auf der Membrantechnik und UV-Bestrahlung, die derzeit jedoch nur unter hohen Betriebskosten (hoher Wartungs- und Reini-

gungsaufwand) sicher betrieben werden können. Zudem erweisen sich die hohen Investitionskosten bei der Membranfiltration als nachteilig. Des Weiteren können beide Verfahren kein Wirkdepot bereitstellen. Daher besteht weiterer Forschungsbedarf hinsichtlich der Entwicklung und Erprobung von alternativen Desinfektionsverfahren. Vor diesem Hintergrund wurde in der vorliegenden Dissertation die Anwendbarkeit der Elektrolyse und UV/Elektrolyse-Hybridtechnik zur dezentralen Gewinnung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser untersucht und bewertet.

Anhand der Untersuchungsergebnisse lässt sich prinzipiell die elektrochemische Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser bei einer Temperatur von $> 6\text{ }^{\circ}\text{C}$, einem pH-Wert von $< 8,5$ und einem DOC-Gehalt von $< 22\text{ mg L}^{-1}$ als zuverlässiges Verfahren mit hoher Desinfektionsleistung einstufen. Unter diesen Bedingungen wurde bei einer Konzentration an freiem Chlor von $0,4\text{...}0,6\text{ mg L}^{-1}$ und einer Nachwirkzeit von $15\text{...}20\text{ min}$ eine *E. coli*-Reduktion von 4 log-Stufen erzielt. Gleichzeitig wird jedoch auch deutlich, dass niedrige Temperaturen, erhöhte pH-Werte und erhöhte DOC-Gehalte limitierende Parameter dieses Desinfektionsverfahrens zur dezentralen Gewinnung von Brauchwasser darstellen. Zudem erweist sich ein hoher Energieverbrauch der mit bordotierten Diamantelektroden (BDD-Elektroden) ausgestatteten Elektrolysezelle von $2\text{...}2,6\text{ kWh m}^{-3}$ als nachteilig. Des Weiteren ist die Bildung von Chlorat ($c = 1,3\text{ mg L}^{-1}$) und Perchlorat ($c = 18\text{ mg L}^{-1}$) an BDD-Elektroden als kritisch einzuschätzen, da diese Desinfektionsnebenprodukte unter anderem humantoxikologisch relevant sind. Die Konzentration von adsorbierbaren organisch gebundenen Halogenen (AOX) und Trihalomethanen (THM) erwies sich als marginal bis moderat.

Durch den Synergieeffekt der kombinierten Anwendung von UV-Bestrahlung (primäre Desinfektionsmethode) und Elektrolyse können sowohl die dargelegten Nachteile der elektrochemischen Desinfektion als auch der UV-Desinfektion als Einzelverfahren kompensiert werden. Entscheidender Nachteil der UV-Desinfektion ist die Photo- und Dunkelreaktivierung von reversibel UV-geschädigten Bakterien. Es wurde festgestellt, dass die Reaktivierung von reversibel UV-geschädigten *E. coli* selbst bei niedrigen Temperaturen ($T = 10\text{ }^{\circ}\text{C}$) und stark schwankenden pH-Werten ($\text{pH} = 5,7\text{...}8,1$) sowie bei geringen Lichtintensitäten bzw. im Dunkeln in einem Ausmaß stattfindet, das eine sichere Verwendung und Lagerung des Brauchwassers ausschließt. Der Minimierung der Reaktivierungsprozesse kann zwar durch Erhöhung der UV-Bestrahlungsdosis begegnet werden. Jedoch wird dies durch hohe Konzentrationen von abfiltrierbaren Stoffen (TSS) limitiert. Ab einer TSS-Konzentration von 17 mg L^{-1} wird, trotz hoher UV-Bestrahlungsdosen von $> 400\text{ J m}^{-2}$, keine vollständige *E. coli*-Reduktion erzielt. Somit ist es zwingend erforderlich, die bakterielle Reaktivierung im UV-behandelten Abwasser zu unterbinden. Dies wurde in der vorliegenden Dissertation durch die elektrochemische Erzeugung von Oxidantien (erfasst als Gesamtoxidantien, GOM) mittels nachgeschalteter Elektrolysezelle untersucht. Es wurde festgestellt, dass die Photo- und

Dunkelreaktivierung durch Gesamtoxidantien in einer Konzentration von 0,5...0,6 mg L⁻¹ bei einer TSS-Konzentration von 8...11 mg L⁻¹ in einem pH-Bereich zwischen 5,7 und 8,1 und einem Temperaturbereich zwischen 10 °C und 30 °C vollständig unterbunden wird (t = 24...72 h). Selbst bei hohen Konzentrationen an abfiltrierbaren Stoffen bis zu 75 mg L⁻¹ wurde die Reaktivierung der *E. coli* (c_{GOM} = 1,8 mg L⁻¹) und bis zu einer TSS-Konzentration von 32 mg L⁻¹ die Reaktivierung der Gesamcoliforme (außer *E. coli*, c_{GOM} = 1,0 mg L⁻¹) bei hohen Ausgangskeimzahlen von 2...3·10⁵ pro 100 mL vollständig unterbunden. Dabei konnte der geringste Energieverbrauch unter Verwendung von Mischoxid (MOX)-Elektroden realisiert werden. Dieses Ergebnis sowie die Feststellung, dass die unerwünschten Nebenprodukte Chlorat und Perchlorat an MOX-Elektroden nicht gebildet wurden, sprechen für den Einsatz dieser Elektroden in der Praxis.

Insgesamt stellt die UV/Elektrolyse-Hybridtechnik bei TSS-Konzentrationen im Bereich von 11...32 mg L⁻¹ eine energieeffiziente Methode (E = 0,17...0,24 kWh m⁻³, MOX-Elektroden) zur Herstellung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser dar. Dabei erfüllt das Brauchwasser die Qualitätsanforderungen für eine Vielzahl von Nutzungsarten, angefangen von der landwirtschaftlichen Bewässerung, über innerstädtische/häusliche Anwendungen bis hin zur Freizeitnutzung. Zudem können die Anforderungen der Ablaufklasse +H (100 Fäkalcoliforme (*E. coli*) pro 100 mL) zuverlässig eingehalten werden. Die Betriebsstabilität der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik sollte ebenfalls innerhalb der erforderlichen Wartungsintervalle (t ≥ 6 Monate) gegeben sein. Der Bildung von unerwünschten Belägen auf Quarzglasoberflächen durch Biofouling konnte durch elektrolytisch erzeugte Oxidantien über einen Zeitraum von 5,5 Monaten vorgebeugt werden. Diese Beläge können bereits bei einer Gesamtoxidantienkonzentration von 1 mg L⁻¹ vermieden werden.

Die Anwendung der UV-Elektrolyse-Hybridtechnik wird jedoch durch steigende Partikelkonzentrationen und Fäkalbelastungen (*E. coli*-Ausgangskonzentration) limitiert. Der resultierende erhöhte Bedarf an Oxidantien zur Vermeidung der Photo- und Dunkelreaktivierung von Fäkalcoliformen führt zu einer erheblichen Erhöhung des elektrischen Ladungs- und Energieeintrags.

Abstract

According to estimates of the United Nations Environment Programme (UNEP), more than 1.8 billion people will be living in countries or regions with absolute water scarcity by 2025. The pressure on water resources is increased not only in arid and semiarid regions, but also in fast growing megacities around the world as a result of, amongst other factors, the changing nutritional and consumer behavior (rising living standards). Over 90 % of the annual water consumption of the newly industrializing and developing countries in the arid and semiarid climate zone is used for agricultural irrigation to ensure the nutrition of the population. Thus, since the beginning of the 20th century, the planned/controlled reuse of wastewater has developed into a central task of the sustainable water resources management. Wastewater represents a valuable resource in view of its composition (e. g. nutrients P, N for soil fertilizing) and its reliable, weather-independent availability in every household. The establishment of a closed-loop water management can enhance the efficiency of water usage. Therefore, activities in research and development are currently focused on decentralized and semicentralized concepts, since their structures offer better conditions for the establishment of closed-loop systems and innovations in wastewater technology can be implemented more easily.

In general, the hygienic quality requirements for wastewater reuse are predominantly oriented towards the planned usage. These are, in turn, regulated by thresholds and guidance values, e. g. for faecal indicator bacteria (e. g. faecal coliforms: *E. coli*), in widely differing norms and legal provisions specific to the respective countries. In Germany since 2005, small wastewater treatment plants can obtain the discharge class +H by the German Institute for Civil Engineering (DIBt: Deutsches Institut für Bautechnik) if secondary effluents contain less than 100 faecal coliforms (*E. coli*) per 100 mL. This ensures a safe effluent seepage in karst and water protection areas. Due to the infectious risk caused by a multitude of pathogens (bacteria, viruses, worm eggs, protozoa) which are still contained in wastewater after mechanical-biological treatment, specific disinfection methods are indispensable for their satisfactory reduction. Demands on disinfection methods for wastewater reclamation are quite complex. They should be characterized by a high and constant disinfection efficiency at low or moderate formation of disinfection by-products. The reclaimed wastewater should be able to be stored safely. Moreover, the disinfection method should be technically simple, scaleable, space-saving, subjected to low maintenance and realized at moderate investment and operating costs without applying external toxic chemicals. Established methods in decentralized wastewater disinfection are mainly based on membrane and UV technologies. However, these methods are currently working under high operating costs (high maintenance and cleaning efforts). Furthermore, the high investment costs of the membrane filtration are disadvantageous. In addition, both methods do not provide a disinfection residual. Thus, fur-

ther research is required for the development and testing of alternative disinfection technologies. Against this background, the applicability of the electrolysis and UV/electrolysis hybrid technology for the decentralized wastewater reclamation was investigated and assessed in this dissertation.

Results have shown that the electrochemical disinfection of biologically treated wastewater represents an efficient method at temperatures of $> 6\text{ }^{\circ}\text{C}$, pH values of < 8.5 and DOC concentrations of $< 22\text{ mg L}^{-1}$. Under these conditions, an *E. coli* reduction of four log levels was achieved at a concentration of free chlorine ranging from 0.4 mg L^{-1} to 0.6 mg L^{-1} and at an after-reaction time of 15...20 min. However, it becomes simultaneously apparent that low temperatures, high pH values and high DOC concentrations are limiting parameters for this disinfection method to reclaim biologically treated wastewater. A high energy consumption of the electrolysis cell equipped with boron-doped diamond (BDD) electrodes ($2\text{...}2.6\text{ kWh m}^{-3}$) represents a further unfavourable effect. Moreover, the undesired formation of chlorate ($c = 1.3\text{ mg L}^{-1}$) and perchlorate ($c = 18\text{ mg L}^{-1}$) at BDD electrodes can be considered as critical, since these disinfection by-products are, amongst others, human-toxicologically relevant. The concentration of adsorbable organically bound halogens (AOX) and trihalomethanes (THMs) proved to be marginal to moderate.

Due to the synergistic effect of the combined application of UV irradiation (primary disinfection method) and electrolysis, the disadvantages of the single methods can be compensated. Decisive drawbacks of UV irradiation are photo and dark repair mechanisms of reversibly damaged bacteria. It was observed that the reactivation of reversibly UV-damaged *E. coli* even occurs at low temperatures ($T = 10\text{ }^{\circ}\text{C}$) and strongly differing pH values ($\text{pH} = 5.7\text{...}8.1$) as well as at low light intensities and in darkness to an extent excluding a safe usage and storage of the reclaimed wastewater. The reactivation processes might be lowered by increased UV fluences. However, this is limited by high concentrations of total suspended solids (TSS). In spite of high UV fluences of $> 400\text{ J m}^{-2}$, no complete removal of *E. coli* bacteria can be achieved at TSS concentrations of $\geq 17\text{ mg L}^{-1}$. Therefore, it is indispensable to prevent bacterial reactivation caused by photo and dark repair processes. This topic was studied in the current work by electrochemically produced oxidants using an electrolysis cell positioned downstream of the UV unit. Results have shown that photo and dark reactivation were completely prevented by oxidants in a total concentration of $0.5\text{...}0.6\text{ mg L}^{-1}$ at a TSS concentration of $8\text{...}11\text{ mg L}^{-1}$, at pH values ranging from 5.7 to 8.1 and at temperatures ranging from $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ to $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($t = 24\text{...}72\text{ h}$). Even at a high TSS concentration of 75 mg L^{-1} , the reactivation of *E. coli* ($c_{\text{total oxidants}} = 1.8\text{ mg L}^{-1}$) and, up to a TSS concentration of 32 mg L^{-1} , the reactivation of total coliforms (except *E. coli*, $c_{\text{total oxidants}} = 1.0\text{ mg L}^{-1}$) can be prevented at a high initial germ concentration of $2\text{...}3 \cdot 10^5$ per 100 mL. The lowest energy consumption could be observed when mixed oxide electrodes (MOX electrodes) were

applied. This result and the fact that no chlorate and perchlorate were observed at MOX electrodes argue for the application of these electrodes in practice.

All in all, the UV/electrolysis hybrid technology represents an energy-efficient method for reclamation of biologically treated wastewater with TSS concentrations ranging from ≤ 11 to 32 mg L^{-1} ($E = 0.17 \dots 0.24 \text{ kWh m}^{-3}$, MOX electrodes). Thereby, the reclaimed wastewater meet the hygienic quality requirements for a multitude of reuse categories starting from agricultural irrigation to urban and recreational reuse. Moreover, the requirements of the discharge class +H (100 faecal coliforms (*E. coli*) per 100 mL) are complied with reliably. The operational stability of the UV/electrolysis hybrid technology should also be ensured within the required maintenance intervals ($t \geq 6$ months). The undesired formation of coverings caused by biofouling processes on quartz glass surfaces could be prevented by electrochemically produced oxidants in a total concentration of 1 mg L^{-1} within an experimental duration of 5.5 months.

However, the application of the UV/electrolysis hybrid technology is limited by increased particle concentrations and faecal loadings (initial *E. coli* concentration). The resulting enhanced demand of electrochemically produced oxidants for the prevention of bacterial reactivation results in a considerable increase of the electric charge input and energy consumption.

*"Ein Problem setzt nicht so sehr eine Lösung voraus,
im analytischen oder auflösenden Sinne, als vielmehr
eine Konstruktion, eine Kreation. Es löst sich im Tun."*

(Miguel de Unamuno)

1. Einleitung - Motivation und Zielstellung

1.1 Globale Wasserkrise - Notwendigkeit eines nachhaltigen (integrierten) Wasserressourcenmanagements

Etwa ein Viertel des weltweit entnommenen Wassers ist Grundwasser, drei Viertel werden aus Flüssen oder Seen entnommen. Dennoch leben derzeit 884 Millionen Menschen ohne sauberes Trinkwasser und 2,6 Milliarden Menschen ohne sichere Sanitärversorgung. Während das Millenniumsziel für Trinkwasser - den Anteil der Menschen ohne Zugang zu sauberen Trinkwasser bis 2015 zu halbieren - im Wesentlichen als erreicht gilt, ist dies im Bereich Sanitärversorgung voraussichtlich nicht der Fall. So fließen weltweit 80 % des städtischen Abwassers unbehandelt in Flüsse, Seen oder Meere, in Entwicklungsländern sind es bis zu 90% (UNESCO, 2012). Die mikrobiologische sowie physikalisch-chemische Wasserqualität wird nicht nur durch Einleitungen aus punktuellen, industriellen oder kommunalen Abwasserquellen, sondern auch durch landwirtschaftlich bedingte Belastungen sowie durch den Eintrag von Schadstoffen aus der Luft beeinträchtigt. Die Verschlechterung der Wasserqualität verschärft zudem das Problem der Wasserknappheit in einigen Regionen Afrikas, Asiens und Südeuropas. Die weltweit ungleichmäßige Verteilung der Wasserressourcen, eine stetig wachsende Weltbevölkerung (7,9...10,3 Milliarden Menschen im Jahr 2050; United Nations, 2004) verbunden mit einer zunehmenden Urbanisierung (2/3 der Weltbevölkerung werden im Jahr 2050 in Städten leben; United Nations, 2004) und steigendem Ressourcenverbrauch sowie klimatische Veränderungen (Weltklimawandel) sind Hauptursachen der zunehmenden Wasserverknappung (IPCC, 2007). Im Jahr 2025 werden voraussichtlich 1,8 Milliarden Menschen in Ländern oder Regionen mit absolutem Wasserstress (pro-Kopf-Verfügbarkeit von erneuerbaren Süßwasserressourcen $< 500 \text{ m}^3/(\text{E a})$) leben (UNEP, 2007). Nicht nur in Regionen der ariden und semiariden Klimazone, sondern auch in schnell wachsenden Megastädten rund um den Globus erhöht sich die Diskrepanz zwischen Wasserbedarf und lokaler/regionaler Verfügbarkeit, die unter anderem durch ein verändertes Ernährungs- und Konsumverhalten (Erhöhung des Lebensstandards) verursacht wird. So leiden Megastädte, wie Tokio, London, Los Angeles, Singapur usw. bereits heute an einer Überlastung ihrer lokalen Wasserressourcen. Auch zukünftig ist von einer zunehmenden Übernutzung bzw. Überlastung regionaler Wasserressourcen aufgrund stetig wachsender Städtezahlen mit mehr als 10 Millionen Einwohnern (17 Städte im Jahr 2001, 21 Städte im Jahr 2015; United Nations, 2004) auszugehen. Zusätzlich führen Leckraten in den Versorgungsnetzen von bis zu 30 % zur wasserwirtschaftlichen Ineffizienz (Kluge et al., 2010) und

absinkende Grundwasserstände tragen zur Wüstenbildung auf einst fruchtbaren Gebieten (Grambow, 2013) bei. Des Weiteren wird der steigende Ressourcenbedarf einiger Industrieländer teilweise auf ärmere Länder abgewälzt, was zur Verstärkung des Wassermangels in ariden Regionen (Spanien, Israel) führt. So werden 62 % des genutzten Wassers Großbritanniens als "virtuelles Wasser" in Form von Reis und Fleisch importiert und nur 38 % des konsumierten Wassers stammt aus dem Land selbst (UNESCO, 2012).

Vor dem Hintergrund des globalen Wandels steht die Wasserwirtschaft vor einer komplexen Herausforderung, wobei sich gegenwärtig ein Paradigmenwechsel vollzieht. Das Prinzip der Nachhaltigkeit steht heute und zukünftig mehr denn je im Vordergrund. Dabei wird als nachhaltige Entwicklung eine Entwicklung beschrieben, die die gegenwärtigen Bedürfnisse deckt, ohne die Fähigkeit zukünftiger Generationen zur Deckung ihrer Bedürfnisse einzuschränken (WCED, 1987). Eingebettet in die Agenda 21 (United Nations, 1995) und den Prinzipien von Dublin (Konferenz von Dublin, 1992; Grambow, 2013) ist das Konzept des Integrierten Wasserressourcenmanagements (IWRM) als internationales Leitbild verankert. IWRM umfasst einen Prozess, der eine koordinierte Entwicklung und das Management von Wasser, Land und den damit verbundenen Ressourcen mit dem Ziel der Maximierung des sozialen und wirtschaftlichen Wohlergehens ohne Beeinträchtigung der lebenswichtigen Ökosysteme und unter gerechten Bedingungen bei der Ressourcennutzung fördert. Dabei ist die aktive Partizipation und Kooperation der verschiedenen gesellschaftlichen und privaten Akteure bei den Planungs- und Entscheidungsprozessen für einen guten Umgang mit Wasser notwendig.

Aus den Nachhaltigkeitsprinzipien lassen sich die vielfältigen Aufgaben eines nachhaltigen Wasserressourcenmanagements ableiten. Einige von diesen sind in Tabelle 1.1 zusammengefasst. Anders als beim traditionellen Wassermanagement (Sammlung, Behandlung und Entsorgung) nimmt hier die Integration der Wasserrückgewinnung und -wiederverwendung eine zentrale Bedeutung zum Schutz und zur Erweiterung verfügbarer Wasservorräte (Verringerung der Diskrepanz zwischen steigendem Wasserverbrauch und begrenztem Wasserdargebot) durch

- Substitution von Wasser mit Trinkwasserqualität durch zurückgewonnenes Wasser für Anwendungen, die keine Trinkwasserqualität erfordern (Tab. 1.2),
- Bereitstellung von alternativen, ergänzenden Wasserquellen zur Deckung des Wasserbedarfs gegenwärtiger und zukünftiger Generationen und damit
- Steigerung der Effektivität und Effizienz der Nutzung von Wasser, Energie und Ressourcen (Verringerung der Frischwasserentnahme),
- Vermeidung der Umleitung von Frischwasser,
- Reduzierung von Abwassereinleitungen und den damit verbundenen Nährstoffen (P, N) und anderen toxischen Kontaminanten sowie

- Einhaltung von Umweltauflagen durch besseres Management des Wasserverbrauchs und der Abwassereinleitungen
- ein.

Tab. 1.1: Kriterien eines nachhaltigen Wasserressourcenmanagements (Gleick, 1998, 2000; Braden et al., 1999; Loucks, 2000; Asano, 2002; Baron et al., 2002)

Ziel	Vorgehen
Deckung des Wassergrundbedarfs ohne die Umwelt zu gefährden	<ul style="list-style-type: none"> • Bereitstellung einer adäquaten Wassermenge in einer angemessenen Qualität zum Schutz der öffentlichen Gesundheit ohne die Umwelt zu gefährden • Orientierung der Wasserentnahme an der Neubildungsrate und Erhaltung der Langzeit-Erneuerbarkeit aquatischer Ressourcen
Schutz natürlicher Ökosysteme/Gewässerschutz	<ul style="list-style-type: none"> • Management der Schnittstelle zwischen gesellschaftlichen Aktivitäten und sensiblen Ökosystemen • Entwicklung neuer Wege für den Gewässerschutz • Förderung der Eliminierung von Abwassereinleitungen (zero effluent discharge) in die aquatische Umwelt (Kreislaufmanagement)
Effiziente Nutzung der Ressourcen	<ul style="list-style-type: none"> • Optimierung der Ressourcennutzung und Kontrolle von Emissionen • Steigerung des Mehrbedarfs an Wasser durch Mehrfachnutzung und Wiederverwendung
Wasserrückgewinnung und -wiederverwendung	<ul style="list-style-type: none"> • Schutz und Erweiterung verfügbarer Wasservorräte • Umweltschutz/Gewässerschutz und Steigerung der Effizienz der Wassernutzung durch ein geschlossenes Kreislaufmanagement von behandeltem Abwasser
Erforschung des Wasserressourcenbedarfs bzw. Wassernutzungsstrukturen und Erzielung eines Konsens	<ul style="list-style-type: none"> • Involvierung öffentlicher und privater Stakeholder in die Planung und Entscheidungsfindung • angemessene Verteilung von Kosten und Nutzen
Gestaltung integrierter anpassungsfähiger und widerstandsfähiger Systeme	<ul style="list-style-type: none"> • Gestaltungsstrategien, die Unsicherheiten, Risiken und Veränderungen von gesellschaftlichen Werten beinhalten • Optionen für eine dauerhaft naturverträgliche, wirtschaftliche und soziale Entwicklung

Nicht nur in ariden/semiariden Regionen ist die Mehrfachnutzung von Wasser unabdingbar.

Zudem können folgende weitere Motivationshintergründe zur Wasserwiederverwendung beitragen (Asano et al., 2007; Meda et al., 2010; Cornel et al., 2010):

- politische Gründe, wie z. B. Unabhängigkeit von Wasserlieferungen aus benachbarten Regionen (z. B. Singapur),
- ökonomische Faktoren als Triebkraft für die Wasserkreislaufführung (Industrie, Haushalt, Hotels, Bewässerung) und für die Nutzung von Wasserinhaltsstoffen z. B. als Dünger oder als Option zur Wärmerückgewinnung,
- Energieeinsparung, da die Aufbereitung von behandeltem Abwasser zur Verwendung als Brauchwasser und seiner Verteilung energetisch günstiger ($E = 0,1 \dots 0,3 \text{ kWh m}^{-3}$) als die Trinkwassergewinnung, -behandlung, -verteilung sowie die Abwassersammlung und -behandlung sein kann ($E = 0,5 \dots 7 \text{ kWh m}^{-3}$) (Abb. 1.1)
- Bevorzugung einer kleinräumigen bzw. *On-site*-Aufbereitung und Verwendung von Brauchwasser, da sich der Transport von Wasser und Abwasser sowie die Trinkwasserverteilung und Abwassersammlung auf die Energiebilanz niederschlagen.

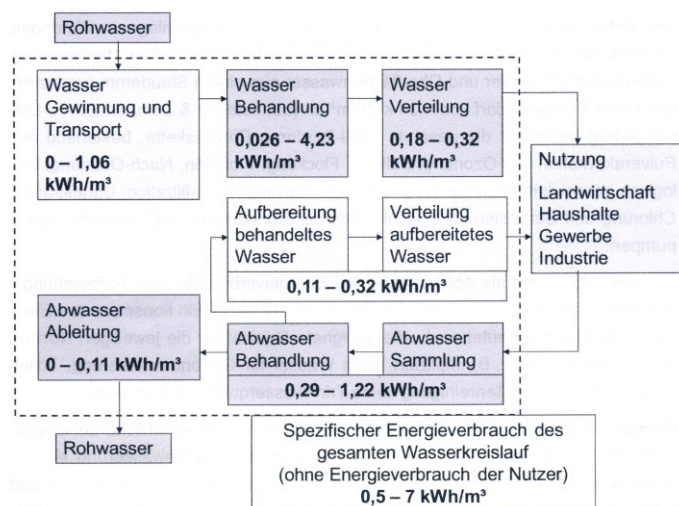


Abb. 1.1: Spezifischer Energieverbrauch des gesamten Wasserkreislaufs am Beispiel von Kalifornien (Cornel et al., 2010)

Vor diesem Hintergrund stellt biologisch gereinigtes Abwasser eine wertvolle Ressource hinsichtlich seiner Zusammensetzung (Nährstoffe P, N zur Bodendüngung) sowie zuverlässigen und witterungsunabhängigen Verfügbarkeit in jedem Haushalt dar.

1.2 Wiederverwendung von biologisch gereinigtem Abwasser

1.2.1 Meilensteine, Möglichkeiten, Potentiale

Im Allgemeinen wird die direkte, geplante/geregelte Wiederverwendung von der indirekten, ungeplanten Nutzung nach Verdünnung durch Einleiten in Oberflächenwässer oder nach der Bodenpassage mit Übertritt ins Grundwasser unterschieden. Einmal eingeleitet in die aquatischen Ökosysteme werden Kläranlagenabläufe wieder Teil des natürlichen Wasserkreislaufs, um anschließend vom Menschen für die verschiedensten Zwecke wieder entnommen zu werden (Hochstrat et al., 2008). Anfang des 20. Jahrhunderts rückte die direkte, geplan-

te/geregelte Wiederverwendung von gereinigtem Abwasser für verschiedene Anwendungsbereiche (Tab. 1.2) verstärkt in den Fokus des Wasserressourcenmanagements.

Tab. 1.2: Kategorien der Wiederverwendung von gereinigtem Abwasser (Asano et al., 2007; Meda et al., 2010)

Kategorie der Wiederverwendung	Beispiele
Landwirtschaftliche Bewässerung	<ul style="list-style-type: none">• Bewässerung von Kulturpflanzen zum Verzehr und Nichtverzehr (Futtermittel-, Faser- und Ölpflanzen)
Innerstädtische Anwendungen	<ul style="list-style-type: none">• Bewässerung von Blumenfeldern• Landschaftsbauliche Bewässerung von Parks, Golfplätzen, Grünstreifen, Grünanlagen, Sportplätzen, Friedhöfen, Wohnanlagen usw.• innerhalb von Gebäuden als Toiletten-spülung, innerhalb der Klimatisierung
Industrielle Wiederverwendung	<ul style="list-style-type: none">• Feuerlöschwasser• Springbrunnenwasser• Kühlwasser• Prozesswasser• Kesselspeisewasser
Freizeitnutzung	<ul style="list-style-type: none">• Seen und Teiche• Erweiterung von Sumpfgebieten• Erhöhung der Wasserführung von Gewässern• Fischereien
Grundwasserneubildung	<ul style="list-style-type: none">• künstliche Beschneigung• Grundwasseranreicherung• Vorbeugung/Bekämpfung der Salzwasser-intrusion
Indirekte Wiederverwendung als Trinkwasser	<ul style="list-style-type: none">• Beimischung in oberirdischen Wasserspeichern• Beimischung im Grundwasserleiter

So verabschiedete Kalifornien im Jahr 1918 die weltweit erste Verordnung zur Wiederverwendung von Abwasser zur landwirtschaftlichen Bewässerung. Seit 1960 werden intensive Forschungsaktivitäten zur Abwasserrückgewinnung und -wiederverwendung realisiert (Asa-

no et al., 1996, 2007; Abb. 1.2). Fortschritte im Bereich der Abwasserreinigung und Risikobewertung (öffentliche Gesundheit) förderten die globale Integration der Abwasserrückgewinnung und -wiederverwendung in die Strategien eines nachhaltigen Wasserressourcenmanagements. Dies wird einerseits im Leitgedanken verschiedener Richtlinien, wie z. B. der "Wastewater Reclamation Criteria" (Titel 22 Regulations) der USA, der Richtlinie des Rates zur kommunalen Abwasserbehandlung der EU (91/271/ EWG: behandeltes Abwasser soll wiederverwendet werden, wo immer es möglich ist) oder der ersten Richtlinien der WHO, sowie andererseits in der Tatsache, dass derzeit weltweit über 3000 Wasserrückgewinnungsanlagen (die meisten davon in Japan: über 1800 Anlagen und in den USA: über 800 Anlagen) existieren, deutlich.

Ära der Rückgewinnung und der Wiederverwendung von Abwasser nach 1960

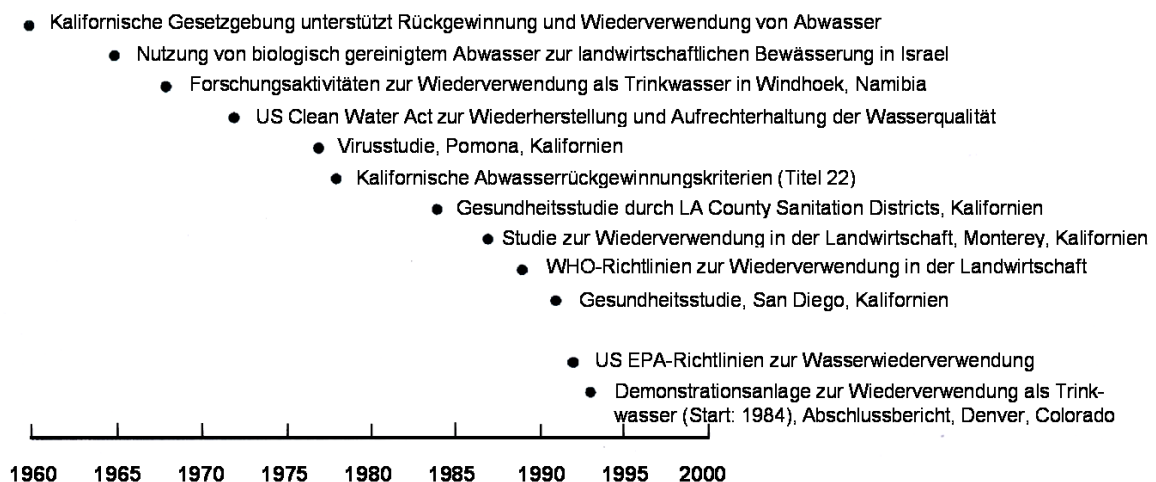


Abb. 1.2: Meilensteine in der Entwicklung der Rückgewinnung und Wiederverwendung von Abwasser (Asano et al., 1996; übersetzt)

In den vergangenen zehn Jahren wurden in der EU über 200, in Australien über 450 Projekte realisiert und in einigen Regionen Chinas zahlreiche regionale Programme zur Wasserrückgewinnung entwickelt. Während die Rückgewinnung und Wiederverwendung von Abwasser in den USA im mittleren und großen Maßstab erfolgt, werden die meisten Projekte in Japan (91 Abwasserrückgewinnungsanlagen) im kleinen Maßstab umgesetzt (Ogoshi et al., 2001). In zahlreichen Ländern Zentral- und Südamerikas, Afrikas und Asiens werden 70...90 % des jährlichen Wasserverbrauchs für die landwirtschaftliche Bewässerung benötigt. Vor allem in Lateinamerika, in den mediterranen Regionen und im Nahen Osten wird biologisch gereinigtes Abwasser für die eingeschränkte landwirtschaftliche Bewässerung verwendet. Hier wurden über 100 Abwasserrückgewinnungsanlagen gebaut. In Europa (Spanien, Frankreich, Niederlande, Großbritannien) wird gereinigtes (desinfiziertes) Abwasser im kleinen Maßstab vor allem für die uneingeschränkte landwirtschaftliche Bewässerung und Landschaftsbewässerung sowie zur Herstellung von Brauchwasser für industrielle und innerstädtische Anwendungen eingesetzt (Bixio et al., 2005). Spanien ist bei Weitem das wichtigste europäische

Land der Wasserwiederverwendung. 2004 wurde über 30 % des Abwassers wiederverwendet (Meda et al., 2010). In Katalonien hat sich die Menge an zurückgewonnenem Wasser auf 51 hm³ zwischen den Jahren 2005 und 2008 verdoppelt (Meneses et al., 2010). In Deutschland wird biologisch gereinigtes Abwasser durchaus regional zur Bewässerung genutzt, spielt jedoch mengenmäßig eher eine untergeordnete Rolle. Jedoch zeigen Untersuchungen von Klimaforschern, dass sich die Niederschlagsmengen in den letzten Jahrzehnten von den Sommermonaten in die Wintermonate verschoben haben, d.h. dass der Regen in einigen Regionen, wie z. B. im Bundesland Brandenburg, zunehmend außerhalb der Vegetationsperioden fällt (Stock, 2004). Zukünftig könnte auch hier der Einsatz von gereinigtem Abwasser für Bewässerungszwecke an Bedeutung gewinnen (Cornel et al., 2010). Weiterhin existiert in Europa ein gesteigertes Interesse an künstlicher Grundwasseranreicherung mit gereinigtem Abwasser, um das Eindringen von Salzwasser in Küstenaquifere zu verhindern (Meda et al., 2010).

Gereinigtes (desinfiziertes) Abwasser dient vor allem in Windhoek (Namibia), Singapur oder Orange County (Kalifornien) als zusätzliche bzw. alternative Trinkwasserressource (Bixio et al., 2005; Meda et al., 2010).

Aus den dargelegten Beispielen wird deutlich, dass die Abwasserreinigung entsprechend den Nachhaltigkeitskriterien zunehmend an den Qualitätsanforderungen, die eine sichere und effiziente Nutzung des behandelten Abwassers ermöglichen, ausgerichtet ist. Dabei liegt das Hauptpotential für die Wiederverwendung von biologisch gereinigtem Abwasser in der landwirtschaftlichen und Landschaftsbewässerung sowie innerhalb von industriellen, innerstädtischen und Freizeitnutzungen (Tab. 1.2). In diesem Bereich realisierte Projekte werden von Lazarova (2001) und Mantovani et al. (2001) als die erfolgreichsten hinsichtlich Akzeptanz und ökonomischer Realisierbarkeit bewertet.

1.2.2 Nachhaltiges dezentrales Abwassermanagement - Kreislaufführung von häuslichem Brauchwasser

Nicht nur der technologische Fortschritt innerhalb der Abwasserreinigung, sondern auch innovative Sanitärkonzepte bewirken zunehmend ein Umdenken vom immer noch teilweise vorherrschenden Zentralisierungskonzept der Abwasserentsorgung. Neuartige ganzheitliche Sanitärkonzepte basieren dabei auf dem Prinzip der Kreislaufwirtschaft, wobei das dezentrale (und semizentrale) Abwassermanagement in vielen Fällen die Verkleinerung und Schließung von Kreisläufen erlaubt und somit aus Sicht der Nachhaltigkeit von großer Bedeutung ist. Tchobanoglous et al. (1996) definieren das dezentrale Abwassermanagement als die Sammlung, Behandlung und Entsorgung oder Wiederverwendung von Abwasser von einzelnen oder mehreren Grundstücken sowie von Streusiedlungen, kleineren/mittleren Industriebetrieben und institutionellen Einrichtungen (Abb. 1.3).

Anders als beim zentralen Abwassermanagement erfolgt hier die Reinigung und weitergehende Behandlung des Abwassers am Entstehungsort (*on-site*) durch eine Kleinkläranlage (bis zu 50 EW, Schmutzwasserzufluss < 8 m³/d, DIN 4261-1) oder eine kleine Kläranlage (bis zu 1.000 EW, Merkblatt DWA-A-222, 2011). In Deutschland dürfen seit 2005 ausschließlich biologische Kleinkläranlagen betrieben werden. Die Zulassung für diese wird durch das Deutsche Institut für Bautechnik (DIBt) vergeben (im Jahr 2013: 336 erteilte Zulassungen für Kleinkläranlagen; DIBt, 2013).

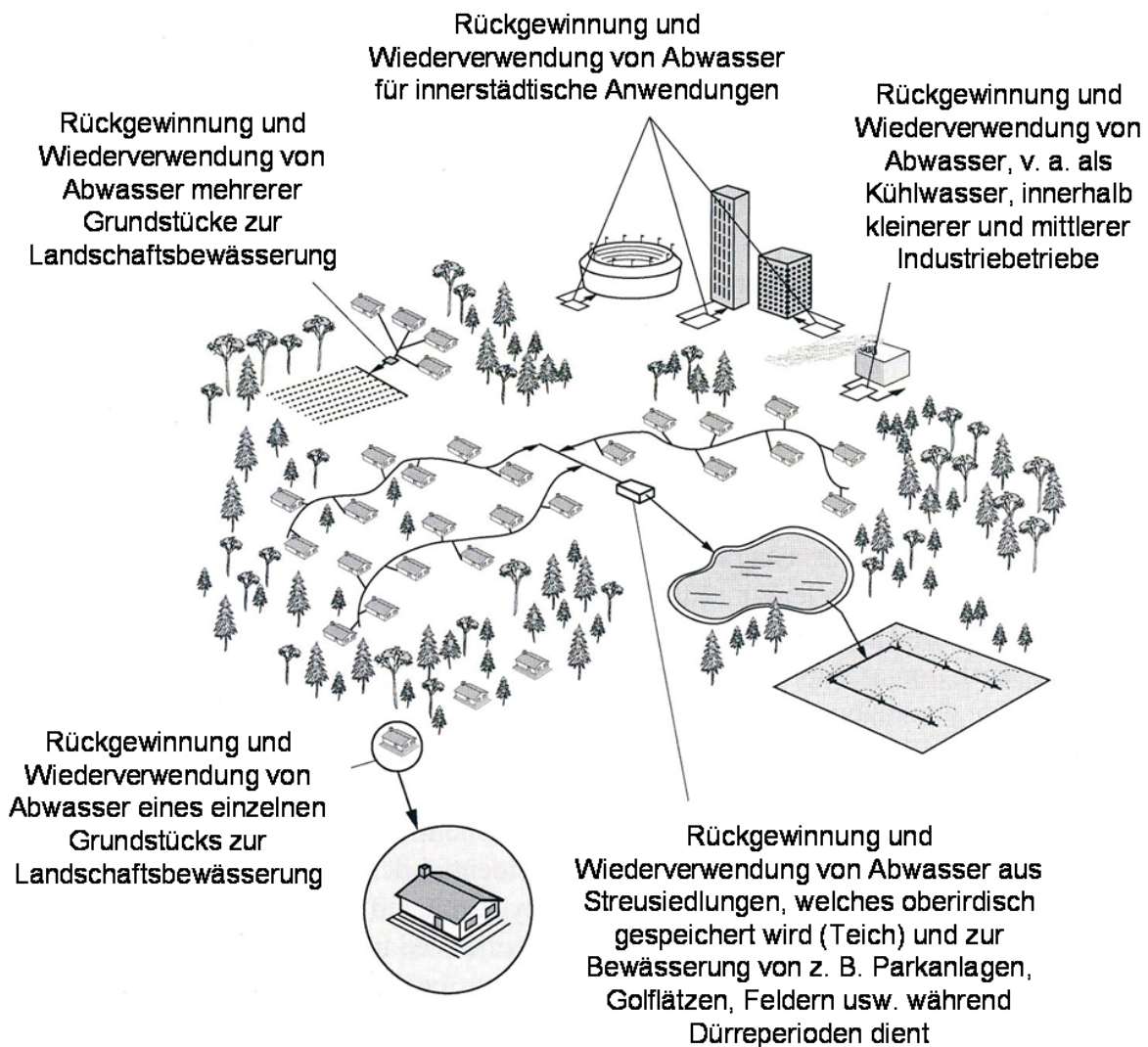


Abb. 1.3: Schematische Darstellung eines dezentralen Abwassermanagements (Asano et al., 2007; übersetzt)

Im Gegensatz zur Reinigung des gesamten Abwasserstroms basieren neuartige Sanitärsysteme auf einer getrennten und separaten Behandlung von Stoffströmen des Abwassers (z. B. sanitäre Trockensysteme mit Urinseparation) oder auf einer Teilentnahme von Stoffströmen zur Reinigung und Wiederverwendung (Oldenburg et al., 2008). Nachteilig wirken sich jedoch

- die aufwendige Installation des Ableitungssystems,

- die Ablagerungen in den Rohrleitungen bei Stoffstromableitung,
- die getrennten Behandlungsanlagen für Schwarz- und Grauwasser, welche hohe Betriebs- und Investitionskosten bedingen sowie
- der hohe Platzbedarf

aus. Daher stellen diese neuartigen Sanitärsysteme keine echte Alternative zu konventionellen Kleinkläranlagen dar. Selbst Hersteller von sogenannten NoMix-Systemen schätzen den zukünftigen Markt als gering ein (Udert, 2007).

Die Effizienz der Wassernutzung wird durch die Etablierung eines sekundären Brauchwasserkreislaufes gesteigert. In Betrieben, in denen große Mengen Wasser verwendet werden, wird die *On-site*-Brauch- oder Betriebswassernutzung schon seit längerer Zeit erfolgreich eingesetzt. Dabei werden über 50...90 % des für industrielle Zwecke zurückgewonnen Wassers überwiegend als Kühlwasser eingesetzt (CSIRO, 2008). In den letzten Jahren gab es auch im häuslichen Bereich ein gesteigertes Interesse an der Brauchwassernutzung. Insbesondere in ländlichen Regionen mit geringer Siedlungsdichte und geografisch schwer erschließbaren Gebieten, in denen keine zentralen Wasserinfrastruktursysteme existieren und in denen der Bau solcher Infrastrukturen aus Kostengründen auch mittel- bis langfristig nicht vorgesehen ist, spielt nachhaltiges dezentrales Abwassermanagement eine bedeutende Rolle. In Deutschland schlägt sich dies z. B. im Wasserhaushaltsgesetz (WHG) und in der Anpassung des technischen Regelwerkes nieder. Auch in urbanen Ballungsräumen verschiedener Industrie- und Schwellenländer ist eine *On-site*-Abwasserrückgewinnung und -wiederverwendung sinnvoll. Die innerstädtische Mehrfachnutzung von Wasser für Anwendungen, die keine Trinkwasserqualität erfordern (z. B. Bewässerung von Grünanlagen, Parks usw. oder als Brauchwasser in sanitären Anlagen und zu Reinigungszwecken), bietet unter anderem die Möglichkeit den Frischwasserverbrauch um 30...40 % auf die Menge, die zum Kochen, Trinken, Körperpflege notwendig ist, zu senken und somit hochwertige Wasserressourcen vor allem dort einzusparen, wo

- die Übernutzung des Wasserdargebots,
- die Absenkung des Grundwasserspiegels,
- ein energieintensiver und teurer Transport von Wasser über mehrere hundert Kilometer und
- die energieintensive Entsalzung von Meerwasser

Folgen von schnell wachsenden Megastädten sind (Meda et al., 2010). Der Einbau von Nutzwassergewinnungsanlagen in Neubauten oder Ein- bzw. Mehrfamilienhäusern ist wenig aufwendig und die Kosten werden durch die Einsparung von Trink- und Abwassergebühren schnell aufgewogen. Das Brauchwasser kann täglich in nahezu gleicher Menge und witterungsunabhängig in jedem Haushalt (Toilettenspülung, Reinigungszwecke) zur Verfügung

gestellt oder für Bewässerungszwecke genutzt werden (Abb. 1.4). Japan könnte hier als Vorbild herangezogen werden. In Tokio setzte sich die Stadtregierung bereits 1973 für die Wiederverwendung von gereinigtem Abwasser ein (Rudolph et al., 2002). 1981 entstand eine Richtlinie für die Wiederverwendung von gereinigtem Abwasser (Ministry of Construction, 1981). 1990 wurde zudem ein Handbuch über Kriterien zur Qualität von gereinigtem Abwasser, welches für ästhetische und Erholungszwecke genutzt werden soll, herausgegeben (Ministry of Construction and Advanced Treatment Council, 1990).

Weitere Vorteile der dezentralen Gewinnung von Brauchwasser gegenüber der zentralen Gewinnung von Brauchwasser sind

- die schnelle technische und bauliche Realisierbarkeit der Kleinkläranlagen,
- die Anpassungsfähigkeit von Kleinkläranlagen an demografische und klimatische Verhältnisse,
- der auf die Qualitätsanforderungen abgestimmte Betrieb und die einfache Integrierbarkeit von Zusatzmodulen/Innovationen in der Abwassertechnik zur weitergehenden Abwasserbehandlung (z. B. Desinfektion),
- die erleichterte Wiederverwendung von Nährstoffen
- die Speicherung des Brauchwassers vor Ort
- kurze/kleine Kanäle und Brauchwasserversorgungsleitungen,
- hausinterne Sammel- und Verteilleitungen,
- geringe Leitungsverluste sowie
- das hohe Verantwortungsbewusstsein und die Akzeptanz beim Verbraucher.

Zu den wesentlichen Argumenten, welche gegen eine Brauchwassernutzung angeführt werden, zählt die Gefahr von Fehlschlüssen oder Verwechslungen und damit eine Gefahr für das Trinkwassernetz und die Gesundheit (Lange et al., 2000). Eine gewissenhafte Planung und die genaue Kennzeichnung von Leitungen, Anschlüssen und Entnahmestellen sollten jedoch diese Gefahren auf ein Minimum reduzieren. Weiterhin wird der aus der Erhöhung der Wassernutzungseffizienz resultierende sinkende Frischwasserbedarf (Haushalte und Gewerbe) bei einem bereits bestehenden zentralen Wasserversorgungssystem nicht immer als vorteilhaft angesehen, da dies zu längeren Aufenthaltszeiten in den Versorgungsleitungen führt und somit zur verstärkten Korrosion sowie Wiederverkeimung beiträgt. Hier stellt sich jedoch in vielen Regionen aufgrund der Unterauslastung bzw. des erheblichen Instandsetzungs- und Renovierungsbedarfs die Frage, ob große Summen in eine Infrastruktur, die ihre Aufgaben aller Voraussicht nicht effizient erfüllen kann oder die nachhaltig unter der Berücksichtigung der Brauchwasserernutzung ausgelegt wird, investiert werden sollten.

Dezentrale Konzepte, in denen Kreislaufsysteme integriert sind, besitzen generell großes Potential, der globalen Wasserkrise entgegenzuwirken und werden daher immer mehr als Al-

ternative zu konventionellen Technologien herangezogen. Jedoch erfordern diese zuverlässige Verfahren zur weitergehenden Abwasserbehandlung bei möglichst geringen bis moderaten Betriebs- und Investitionskosten, woraus sich die Notwendigkeit einer umfangreichen Forschung zu innovativen bzw. alternativen Desinfektionsverfahren ergibt (Abb. 1.4). Die vorliegende Dissertation soll hierzu einen Beitrag leisten.

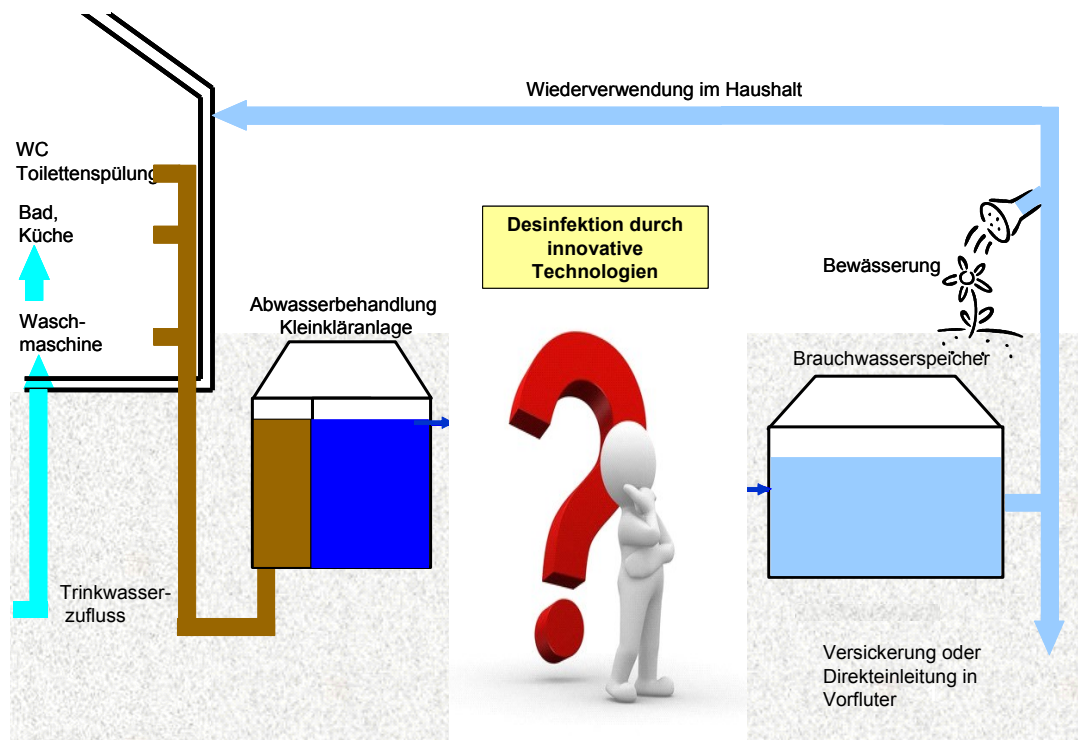


Abb. 1.4: Desinfektion von biologisch gereinigtem häuslichem Abwasser zur Brauchwassergewinnung

1.3 Aufgaben- und Zielstellung

Das Ziel der kumulativ erstellten Dissertation bestand darin, die Desinfektionsverfahren Elektrolyse und UV/Elektrolyse hinsichtlich ihrer Anwendbarkeit zur dezentralen Gewinnung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser zu untersuchen und zu bewerten. Den drei Artikeln (peer-reviewed), die in internationalen Fachzeitschriften publiziert wurden (Kap. 3.1 bis Kap. 3.3) und den Kern dieser Arbeit bilden, ist neben der bereits dargelegten bedeutenden Rolle der direkten, geplanten/geregelten Wiederverwendung von Abwasser (Kap. 1.1 und Kap. 1.2) ein zusammenfassender Überblick zu mikrobiologischen Anforderungen an Brauchwasser für verschiedene Anwendungsmöglichkeiten (Kap. 2.1) sowie zum derzeitigen Kenntnisstand zur Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser (Kap. 2.2) verbindend vorangestellt. Dies sowie die Herausarbeitung des sich ergebenden Forschungspotentials verdeutlichen die Einordnung der Artikel in die Thematik der Dissertation.

Aus der Zielstellung ergaben sich folgende Aufgaben:

(1) Entwicklung eines nachschaltbaren Elektrolysemoduls für die Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser zur dezentralen Gewinnung von Brauchwasser und Untersuchung von relevanten Einflussparametern auf die Desinfektionsleistung

Innerhalb dieser Aufgabenstellung sollte eine für biologische Kleinkläranlagen nachschaltbare Elektrolysezelle entwickelt werden. Im Mittelpunkt der Untersuchungen stand die Ermittlung des Einflusses der verfahrensspezifischen Parameter Stromdichte und Volumenstrom sowie der abwasserspezifischen Parameter pH-Wert, Temperatur und DOC-Gehalt auf die elektrochemische Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser mittels bordotierten Diamantelektroden (BDD-Elektroden). Dabei wurden die Einflussparameter innerhalb sinnvoller Grenzen, welche sich an den Realbedingungen in Kleinkläranlagen orientierten, variiert und die Desinfektionsleistung anhand der Fäkalindikatorbakterien *E. coli* bestimmt. Die Ermittlung des Bildungspotentials unerwünschter anorganischer (Chlorit, Chlorat, Perchlorat) und organischer Desinfektionsnebenprodukte (Trihalomethane, AOX) bildete einen weiteren Schwerpunkt der Untersuchungen.

Anhand der Ergebnisse sollten Schlussfolgerungen auf die optimalen bzw. limitierenden Bedingungen für die elektrochemische Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser gezogen werden.

*(2) Untersuchung verschiedener Einflussparameter auf die Reaktivierung reversibel geschädigter *E. coli* nach der UV-Bestrahlung von biologisch gereinigtem Abwasser sowie Entwicklung und Prüfung der prinzipiellen Eignung eines UV/Elektrolyse-Hybridmoduls zur Vermeidung der bakteriellen Reaktivierung*

Aus dem derzeitigen Kenntnistand (Kap. 2.2.1) und den Praxiserfahrungen geht hervor, dass die UV-Desinfektion prinzipiell eine effiziente Desinfektionsmethode (Konzentration von abfiltrierbaren Stoffen $\leq 20 \text{ mg L}^{-1}$ und Transmission $\geq 55 \%$) bei geringen Investitions- und Betriebskosten darstellt. Entscheidender Nachteil ist jedoch die Gefahr der Reaktivierung reversibel geschädigter Pathogene, was ein wichtiges Ausschlusskriterium hinsichtlich der sicheren Verwendung und Lagerung des UV-bestrahlten Abwassers als Brauchwasser darstellt. Vor diesem Hintergrund wurde zunächst untersucht, inwiefern das Ausmaß der Reaktivierung reversibel UV-geschädigter *E. coli* durch die relevanten abwasserspezifischen Parameter pH-Wert und Temperatur sowie die Lichtintensität positiv oder negativ beeinflusst wird. Aufbauend auf diesen Erkenntnissen sollte die potentielle Eignung der kombinierten Anwendung der UV-Desinfektion (primäres Desinfektionsverfahren) und der Elektrolyse als Hybridverfahren zur Vermeidung der *E. coli*-Reaktivierung untersucht werden. Innerhalb dieser Thematik bildete das Screening verschiedener Elektrodenmaterialien einen weiteren Schwerpunkt, wobei die Produktionsrate von freiem Chlor und von Gesamtoxidantien bestimmt wurde. Zusätzlich sollte der Einfluss der Elektrodenmaterialien auf die Bildung unerwünschter anorganischer (Chlorit, Chlorat,

Perchlorat) und organischer Desinfektionsnebenprodukte (Trihalomethane, AOX) ermittelt und Schlussfolgerungen zum optimalen Elektrodenmaterial gezogen werden.

(3) *Untersuchung und Bewertung der neuartigen UV/Elektrolyse-Hybridtechnik zur Vermeidung der Reaktivierung reversibel UV-geschädigter E. coli hinsichtlich relevanter Einflussparameter und Einsatzgrenzen innerhalb der dezentralen Gewinnung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser*

Vor diesem Hintergrund sollte der Einfluss der Konzentration von abfiltrierbaren Stoffen (TSS) als wichtigster limitierender Parameter der UV-Bestrahlung (primäre Desinfektionsmethode) sowie der *E. coli*-Ausgangskonzentration auf das Ausmaß der *E. coli*-Reaktivierung ermittelt werden. Zudem sollten Aussagen zur Wirtschaftlichkeit des UV/Elektrolyse-Hybridmoduls bezogen auf den Energieverbrauch bei schwankenden TSS-Konzentrationen bzw. Transmissionswerten getroffen und die sichere Verwendung des desinfizierten Abwassers als Brauchwasser bewertet werden. Weiterhin wurde untersucht, inwiefern durch Biofouling verursachte Beläge, welche häufig auf den Quarzglashüllrohren der UV-Strahler in der Praxis auftreten, durch elektrolytisch erzeugte Oxidantien verringert bzw. vermieden werden können. Dies könnte zur Erhöhung der Wartungsintervalle der UV-Anlage innerhalb des UV/Elektrolyse-Hybridmoduls beitragen.

Ausgewählte Ergebnisse der Untersuchungen wurden in den Fachartikeln

- *"Influence of operating conditions and wastewater-specific parameters on the electrochemical bulk disinfection of biologically treated sewage at boron-doped diamond (BDD) electrodes"* (Desalination and Water Treatment 46, 2012, 160-167; Kap. 3.1),
- *"Limits of UV disinfection: UV/electrolysis hybrid technology as a promising alternative for direct reuse of biologically treated wastewater"* (Journal of Water Supply Research and Technology - AQUA, 62, 2013, 442-451; Kap. 3.2),
- *"Disinfection of biologically treated wastewater and prevention of biofouling by UV/electrolysis hybrid technology: Influence factors and limits for domestic wastewater reuse"* (Water Research 52, 2014, 20-28; Kap. 3.3)

veröffentlicht. In Kapitel 4 dieser Dissertationsschrift werden die wesentlichen Erkenntnisse in einer publikationsübergreifenden Zusammenfassung dargelegt und diskutiert sowie in Kapitel 5 ausblickend reflektiert. Es sei zudem auf einen weiteren Fachartikel (peer-reviewed; Schmalz et al., 2009), auf vier weitere Tagungsbeiträge (Haaken et al., 2009, 2010; Schmalz et al., 2008, 2012) sowie auf einen Messebeitrag (Haaken et al., 2011) zu dieser Thematik verwiesen (Kap. 6).

2. Grundlagen und Literaturlauswertung

2.1 Qualitätsanforderungen für die Wiederverwendung von biologisch gereinigtem Abwasser

Integriertes Wasserressourcenmanagement bedeutet vor allem, Bedarf und Ressource bezüglich Menge und Qualität in Einklang zu bringen. Dabei setzt die sichere Nutzung von gereinigtem Abwasser die Einhaltung definierter Qualitätsanforderungen voraus, wobei diese vor allem folgenden Zielen dienen:

1) *Schutz der öffentlichen Gesundheit, das heißt*

- Festlegung von Grenzwerten für Pathogene und toxische Stoffe,

2) *langfristiger Schutz des Bodens, der Pflanzen, des Grundwassers/der Oberflächengewässer (Frischwasserressourcen), das heißt*

- Begrenzung/Minimierung des Salz- und Schwermetallgehaltes, pflanzentoxischer Ionen (z. B. Bor, Chlorid, Natrium) in Böden und des Salz- und Nährstoffeintrages ins Grundwasser,
- keine Grundwasseranreicherungen mit ungenügend gereinigtem Abwasser,
- Anpassung der agrarwirtschaftlichen Bewässerung an örtliche Gegebenheiten,
- Desinfektion von Brauchwasser unter Minimierung chlororganischer Verbindungen,

3) *sichere Speicherung außerhalb der Vegetationsperioden, das heißt*

- Begrenzung des Nährstoffgehaltes, um übermäßiges Algenwachstum bei oberirdischer Speicherung zu vermeiden,
- Minimierung des Nährstoffeintrages ins Grundwasser bei unterirdischer Speicherung, und

4) *Akzeptanz, das heißt*

- Berücksichtigung organoleptischer Parameter wie Geruch, Färbung, Trübung,
- soziokulturelle Akzeptanz,
- frühzeitige Einbeziehung aller Beteiligten in Planungsprozesse,
- Berücksichtigung wasserwirtschaftlicher Rahmenbedingungen, technischer Anforderungen, finanzieller, ökonomischer und regulatorischer Aspekte, der Umweltverträglichkeit und Nachhaltigkeit.

Aufgrund unterschiedlicher klimatischer, geologischer und geographischer Voraussetzungen, ökonomischer und sozialer Aspekte, unterschiedlich verteilter Wasserressourcen, usw. existiert weltweit keine einheitliche Regulierung der Qualitätsanforderungen für die Wiederverwendung von Abwasser. Neben den Restkonzentrationen an anorganischen Nährstoffen (P, N) sowie abfiltrierbaren und gelösten organischen Stoffen (TSS, TOC, BSB₅) stellt die mikrobiologische Belastung des Abwassers ein prioritäres Kriterium zu dessen sicheren Wiederverwendung dar.

2.1.1 Hygienische Anforderungen - Pathogene, Indikatororganismen

Selbst nach mechanisch-biologischer Reinigung enthalten häusliche/kommunale Abwässer eine Vielzahl von Pathogenen, vor allem enteritische Mikroorganismen, die im Gastrointestinaltrakt vorkommen und fäkal-oral übertragen werden. Im Allgemeinen werden im Abwasser enthaltene Pathogene in die vier Gruppen Bakterien, Protozoen, Viren und Helminthen eingeteilt. Tabelle 2.1 vergleicht die mikrobiologische Zusammensetzung von Rohabwasser mit biologisch gereinigtem Abwasser und zeigt entsprechende Median-Infektionsdosen auf.

Tab. 2.1: Pathogene (Konzentration, Median-Infektionsdosis, Krankheiten) in unbehandeltem und biologisch gereinigtem Abwasser (WERF, 2004; Australian Guidelines for Water Recycling, 2006; WHO, 2006; Asano et al., 2007; Costán-Longares et al., 2008; Kuo et al., 2010; El-Senousy et al., 2013; Kitajima et al., 2013)

Mikroorganismus	Krankheit	Konzentration in unbehandeltem Abwasser (MPN bzw. Eier pro 100 mL)	Konzentration in biologisch gereinigtem Abwasser (MPN pro 100 mL)	Infektionsdosis (Median) N ₅₀
Bakterien		bis zu 10⁹	bis zu 10⁶	
<i>Fäkalcoliforme/Escherichia coli</i> (enteropathogen)	Gastroenteritis, Enteritiden, Enterotoxämien	10 ⁵ ...10 ⁹	10 ² ...10 ⁵	10 ⁶ ...10 ¹⁰
<i>Salmonella</i> (= 2100 Serotypen)	Salmonellose	10 ² ...10 ⁴	1...10 ³	10 ⁴ ...10 ⁶
<i>Shigella</i> (4 spp.)	Bakterielle Ruhr	1...10 ³	1...10 ²	10 ² ...10 ³
<i>Vibrio cholerae</i>	Cholera	10...10 ⁴	1...10 ²	10 ⁶ ...10 ⁸
<i>Pseudomonas aeruginosa</i>	Dermatitis, Otitis	10 ⁴ ...10 ⁶	10 ³ ...10 ⁵	
Intestinale Enterokokken	Harnwegsinfektionen, Bauchfellentzündungen, Endokarditis	10 ⁵ ...10 ⁷	10 ² ...10 ⁵	
<i>Clostridium perfringens</i>	Gasbrand, Meningitis	10 ² ...10 ⁶	10...10 ⁴	1...10 ¹⁰
Protozoen		bis zu 10⁶	bis zu 10⁴	
<i>Cryptosporidium parvum</i> oocysts	Kryptosporidiose	1...10 ⁵	1...10 ⁴	1...10
<i>Entamoeba histolytica</i>	Amöbenruhr	1...10 ⁵	1...10 ⁴	10...20
<i>Giardia lamblia</i> cysts	Lambienruhr	10...10 ⁶	1...10 ⁴	<20...10 ²
Helminthen		bis zu 10³	bis zu 10³	
<i>Ascaris lumbricoides</i>	Ascariasis (Spulwurmbefall)	1...10 ²	1...10 ²	1...10
<i>Trichuris trichiura</i>	Trichuriasis (Peitschenwurmbefall)	1...10	1...10	
Viren				
Enteroviren (72 Typen) z. B.. Polioviren und Coxsackieviren	Meningitis, Paralysis	bis zu 10⁶	bis zu 10⁴	10 ²
Rotavirus	Meningitis, Mykokarditis	10...10 ⁵	1...10 ⁴	50...10 ²
Adenovirus	Gastroenteritis, Diarrhö	10...10 ⁴	1...10 ²	5...10
	Gastroenteritis, Atemwegserkrankung	1...10 ⁶	1...10 ³	2...5

Bei der Festlegung hygienischer Grenzwerte spielt die Art des Kontaktes zwischen Abwasser und Mensch eine entscheidende Rolle und wird je nach Gefährdungspotential verschieden definiert. Zu den möglichen Kontaktarten zählen der direkte Kontakt über die Haut und über die Atemwege sowie der indirekte Kontakt über den Verzehr von mit Abwasser bewässerten Agrarprodukten.

Da der unmittelbare Nachweis vieler im Wasser vorkommenden Krankheitserreger innerhalb von Routineuntersuchungen technisch schwierig bis unmöglich, sehr zeitaufwendig und kostenintensiv ist, werden bei bakteriologisch-hygienischen Untersuchungen Indikatororganismen verwendet. Schon im 19. Jahrhundert führten Krankheiten wie Typhus und Cholera zur Überlegung, die mikrobiologische Qualität des Trinkwassers mittels Indikatorbakterien routinemäßig zu überwachen. Im Allgemeinen wird eine Vielzahl von Anforderungen an Indikatororganismen gestellt (Grabow, 1996; CIWP, 2004; WERF, 2004). So sollten diese

- fäkale Verunreinigungen anzeigen, ohne selbst pathogen zu sein,
- sich nicht in natürlichen Wässern vermehren,
- anwesend sein, wenn Pathogene anwesend sind,
- in einer größeren Zahl als die Pathogene vorkommen,
- eine quantitative Beziehung zum Krankheitsrisiko infolge der Wasserexposition aufweisen,
- mindestens genauso widerstandsfähig wie Pathogene sein oder eine größere Widerstandsfähigkeit gegenüber negativen Umwelteinflüssen, Desinfektion oder anderen Wasserbehandlungsverfahren aufweisen sowie
- schnell, einfach, preiswert, präzise, mit adäquater Sensitivität und unabhängig von der Wassermatrix nachweisbar sein.

Obwohl zahlreiche Mikroorganismen einige der geforderten Eigenschaften aufweisen, existiert bis heute kein Indikatororganismus, der jede dieser Anforderungen erfüllt. Im Allgemeinen werden unter anderem

- Gesamtcoliforme,
- Fäkalcoliforme bzw. *E. coli*,
- fäkale (intestinale) Enterokokken,
- *Clostridium perfringens*,
- *Pseudomonas aeruginosa*,
- *Legionella* species,
- *Staphylococcus aureus*,
- die Koloniezahl heterotropher Bakterien
- Bakteriophagen usw.

als Indikatororganismen verwendet.

Die fäkalen Indikatorbakterien intestinale Enterokokken sowie *Clostridium perfringens* (auch Indikator für enteritische Viren sowie für Zysten und Oozysten von parasitischen Protozoen) sind zwar gegen Umwelteinflüsse und Desinfektionsverfahren widerstandsfähiger als *E. coli*

und können eine lang zurückliegende fäkale Belastung noch anzeigen, jedoch ist vor allem der Nachweis von *Clostridium perfringens* sehr teuer und zeitaufwendig (Grabow, 1996).

Eine Sonderstellung nehmen Salmonellen und Wurmeier ein. Salmonellen sind zwar keine Indikatorbakterien, werden jedoch zur hygienischen Beurteilung ermittelt. Auch die Summe aller Helmintheneier wird nach US EPA (2012) bei der Bewertung zur Wiederverwendung von Brauchwasser herangezogen.

Seit Jahren sind neben sporenbildenden Bakterien Bakteriophagen als mögliche ergänzende Indikatororganismen im Gespräch. Dabei handelt es sich um Viren, die Bakterien befallen. Bakteriophagen besitzen ähnliche Eigenschaften und ein ähnliches Verhalten in Wässern/in der Umwelt wie humanpathogene Viren und können daher das potentielle Vorhandensein von enteritischen Viren anzeigen (Leclerc et al., 2000; Carter, 2005). Häufig treten diese in verunreinigten Wässern in Konzentrationen ähnlich wie Fäkalindikatorbakterien auf und sind einfach, schnell und kostengünstig nachzuweisen (Huber, 2008). Jedoch können Bakteriophagen, wie z. B. somatische Coliphagen, neben *E. coli* auch andere coliforme Bakterien infizieren, das heißt sie können in Wässern ohne fäkale Verunreinigungen vorkommen und sich unter bestimmten Bedingungen dort sogar vermehren (Grabow, 2001). Zudem ist die Eignung der Bakteriophagen als virale Indikatoren zweifelhaft, da diese durch einen gewissen Anteil der Bevölkerung mehr oder weniger immer, Viren dagegen in der Regel nur durch infizierte Personen und für eine kurze Zeitspanne, ausgeschieden werden (Wolf, 2005). Der derzeitige Stand zur Beurteilung der viralen Gefährdung im Brauchwasser ist unzureichend.

E. coli und coliforme Bakterien sind bis heute die am häufigsten bestimmten Hygieneindikatoren in Wässern. Während *E. coli*-Bakterien ausschließlich in den Fäzes von Warmblütern zu finden sind, weist das Vorhandensein von coliformen Bakterien nicht immer zwingend auf eine fäkale Verunreinigung hin. Auch das Gegenteil, die Abwesenheit von coliformen Bakterien, impliziert nicht in jedem Fall eine Abwesenheit von Krankheitserregern (Viren, Protozoen und Parasiten). Heute wird vermehrt angenommen, dass *E. coli*-Bakterien besser als die Gesamtzahl der coliformen Bakterien zur bakteriologisch-hygienischen Überwachung von Wässern geeignet sind.

Es lässt sich schlussfolgern, dass zwar jeder mikrobiologische Indikator seine Vor- und Nachteile besitzt, dennoch aber nicht alle Anforderungen an ein mikrobiologisches Routine-monitoring erfüllen kann. Daher fällt die Wahl der Indikatororganismen bei der hygienischen Beurteilung von Wässern häufig sehr unterschiedlich aus. Eine Kombination bakterieller und viraler Indikatoren ist dabei von Vorteil, jedoch nicht immer innerhalb von Routineanalysen umsetzbar, wodurch Abstriche erforderlich sind. Im Rahmen dieser Dissertation wurde daher die Desinfektionsleistung sowie das Ausmaß der bakteriellen Reaktivierung bevorzugt anhand der Fäkalindikatorbakterien *E. coli* charakterisiert.

2.1.2 Richtlinien, Normen und Rechtsvorschriften

Die Konzentrationsgrenzwerte für die Fäkalindikatororganismen *E. coli* sind in einer Vielzahl von stark unterschiedlichen, länderspezifischen Normen, Rechtsvorschriften, Regelwerken und Richtlinien (Richtlinien der US EPA, WHO, FAO; Richtlinien verschiedener Länder: Zypern, Spanien: Ministerio de Obras Públicas, Transporte y Medio Ambiente, Frankreich: Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France, Israel: Israel Ministry of Environment usw.) formuliert und orientieren sich vor allem an der geplanten Nutzung des gereinigten Abwassers (Tab. 2.2). Dabei enthalten die US EPA-Richtlinien unter anderem Informationen zu den Anforderungen der Wasserwiederverwendung einzelner US-Bundesstaaten, wobei Kalifornien besonders strenge Regelungen aufweist (California Code Regulations, 2000). So darf desinfiziertes tertiär gereinigtes Abwasser, welches für alle Nutzungsarten (Tab. 1.2) außer zu Trinkwasserzwecken oder zur Lebensmittelzubereitung verwendet wird, lediglich 2,2 Coliforme pro 100 mL enthalten (7 Tage-Median). Desinfiziertes sekundär gereinigtes Abwasser darf einen Grenzwert von 2,2...23 Coliformen pro 100 mL (7 Tage-Median) je nach Nutzungsart nicht überschreiten. Im Jahr 2012 wurden die US EPA-Richtlinien aktualisiert (in Bezug auf die regionalen Möglichkeiten der Wasserwiederverwendung in den USA, auf die Involvierung von Kommunen in die Planungsprozesse, auf Faktoren zur weltweiten Integration einer sicheren und nachhaltigen Wiederverwendung von Wasser usw.).

Standards anderer Länder (Israel, Oman) orientieren sich häufig an den amerikanischen und insbesondere an den kalifornischen Standards.

Auf EU-Ebene existieren zwar verschiedene Richtlinien, Verordnungen und Rechtsvorschriften zur Vermeidung der Wasserverschmutzung und bezüglich der Wasserqualität (u. a. Wasserrahmenrichtlinie, Grundwasser-, Oberflächengewässer-, Badegewässer-, Fischgewässer-, Muschelgewässer-, städtische Abwasserbehandlungs-, Nitrat-, Pflanzenschutzmittel-Richtlinie, Trinkwasser- und Abwasserverordnung usw.), jedoch sind Richtlinien zur Wasserwiederverwendung rar. Die im Jahr 2006 novellierte EU-Badegewässerrichtlinie enthält mikrobiologische Grenzwerte für Binnen- und Küstengewässer. So darf der Grenzwert von 500 *E. coli* pro 100 mL in einem Binnengewässer und 250 *E. coli* pro 100 mL in einem Küstengewässer mit ausgezeichneter Qualität nicht überschritten werden. Auch die Richtlinie 91/271/EWG des Rates vom 21. Mai 1991 enthält Mindestanforderungen an die Einleitung von kommunalen Kläranlagenabläufen. Für sensible Gebiete gelten dabei besondere Anforderungen. Obwohl auf EU-Ebene nur wenige Richtlinien existieren, wurden z. B. in Spanien, Frankreich, Zypern oder Italien eigene Normen bzw. Anordnungen zur Wiederverwendung von Abwasser definiert.

In Deutschland wird im Kleinkläranlagenbereich seit 2005 nach den Grundsätzen des Deutschen Instituts für Bautechnik (DIBt) die Zusatzklasse +H definiert. Diese schreibt einen Grenzwert von 100 Fäkalcoliformen (*E. coli*) pro 100 mL im Ablauf vor. Dies ermöglicht die

gefahrlose Versickerung des Abwassers in Karst- und Wasserschutzgebieten. Des Weiteren sind in der DIN 19650 Anforderungen für die hygienische Qualität und in der DIN 19684-10 Anforderungen für die physikalisch-chemische Beschaffenheit von Bewässerungswasser definiert, wobei beide Normen keinen rechtsverbindlichen Charakter aufweisen. Zudem wurde das Merkblatt "Betriebswassernutzung in Gebäuden" mit hygienischen Qualitätszielen von der Berliner Senatsverwaltung für Bau- und Wohnungswesen im Jahr 1995 herausgegeben. Hier darf das Betriebswasser (Toilettenspülung, Reinigungszwecke, Bewässerung von Gärten, Fassaden usw., Kühlzwecke) einen Grenzwert von 1000 *E. coli* pro 100 mL bzw. 10.000 Gesamtcoliforme pro 100 mL nicht überschreiten. Auch diese Norm ist nicht rechtsverbindlich.

Es sei weiterhin erwähnt, dass nicht in jeder Richtlinie Konzentrationsgrenzwerte für hygienische Parameter definiert sind. So werden in der Neufassung der WHO-Richtlinie "Guidelines for the safe use of wastewater, excreta and grey water" (2006) die Chancen der sicheren Abwasserwiederverwendung in der Bewässerungslandwirtschaft stärker betont sowie lokale Möglichkeiten und Beschränkungen besser reflektiert, ohne den Anspruch des Gesundheitsschutzes aufzugeben. Definierte Gesundheitsziele sollen über einen Katalog von Maßnahmen eingehalten werden. Dabei wird auf den Ansatz der quantitativen mikrobiologischen Risikobewertung (engl. QMRA) zurückgegriffen, bei dem das mittlere Infektionsrisiko verschiedener exponierter Individuen (Konsumenten, Bauern) abgeschätzt wird. So liegt z. B. das mittlere Risiko eines Konsumenten - bei fünfmonatigem Rohverzehr (1 × wöchentlich) einer mit biologisch gereinigtem Abwasser (103...105 *E. coli* pro 100 mL) unbeschränkt bewässerten Kulturpflanze (Gemüsezwiebel) - an einer Rotavireninfektion zu erkranken bei immerhin 38 %. Durch den Vergleich mit epidemiologischen Langzeitstudien konnte die Qualität dieses modellierten QMR-Risikofaktors belegt werden (Mara et al., 2005). Des Weiteren wurde der maßgebliche Modellparameter DALY (Disability-Adjusted Life Year) zur Festlegung von Gesundheitszielen definiert. Hier wird die Zahl der verlorenen Lebensjahre durch vorzeitigen Tod mit dem Verlust an Lebenszeit durch Behinderung oder Krankheit kombiniert. Als tolerierbares Risikolevel wurde ein DALY-Wert von $\leq 10^{-6}$ festgelegt, d.h. einer Population von 1 Million Menschen dürfen durch die Folgen von Infektionserkrankungen maximal 1 Jahr Lebenszeit entzogen werden.

2. Grundlagen und Literaturlauswertung

Tab. 2.2: Mikrobiologische Qualitätsanforderungen an Brauchwasser in Abhängigkeit von der geplanten Nutzung

Kategorie der Wiederverwendung	Gesamtcoliforme pro 100 mL			Fäkalcoliforme bzw. <i>E. coli</i> pro 100 mL		Intestinale Enterokokken ¹ (Fäkalstreptokokke		Wurmeier pro L
Landwirtschaftliche Bewässerung	USA			USA ³	Deutschland ⁸	USA ⁴	Deutschland ⁸	Deutschland ⁸
Agrarkulturen zum menschlichen Rohverzehr	≤ 2,2 ¹			n. n.	≤ 200	≤ 4	≤ 100	n. n.
Agrarkulturen zum menschlichen Verzehr, die verarbeitet/gekocht werden	≤ 23 ²			≤ 200	k. A.	≤ 35	k. A.	k. A.
nicht zum menschlichen Verzehr bewässerte Agrarkulturen (Futterpflanzen)	≤ 23 ²			≤ 200	≤ 2000 ⁹	≤ 35	≤ 400 ⁹	n. n. ⁹
Innerstädtische Anwendungen	USA ¹	Japan ⁵	Deutschland ⁷	USA ³	China ¹⁰	Deutschland ⁷	USA ⁴	
uneingeschränkt: kein Trinkwasser, öffentlicher Zugang ist nicht beschränkt (z. B. Toilettenspülung innerhalb von Gebäuden, Reinigungszwecke)	≤ 2,2	≤ 1.000	< 10.000	n. n.	< 3	< 1.000	≤ 4	
eingeschränkt: kein Trinkwasser, öffentlicher Zugang wird kontrolliert oder ist beschränkt (z. B. Golfplätze, Friedhöfe, Wohnviertel)	≤ 23	≤ 50	k. A.	≤ 200	k. A.	k. A.	≤ 35	
Freizeitnutzung (z.B. Badegewässer)	USA ¹	Japan ⁶		USA ³	China ¹¹	EU ¹³	USA ⁴	EU ¹³
uneingeschränkter Körperkontakt (z. B. baden)	≤ 2,2	k. A.		n. n.	< 500	≤ 500	≤ 4	≤ 200
eingeschränkter Körperkontakt (z. B. fischen, Boot fahren)	≤ 2,2	≤ 50		≤ 200	< 10.000	k. A.	≤ 35	k. A.
Indirekte Wiederverwendung als Trinkwasser	USA ³			USA ⁴ China ¹²		USA ⁴		
Beimischung in oberirdischen Wasserspeichern und im Grundwasserleiter	n. n.			≤ 20	< 3	≤ 4		

RL - Richtlinie; n. n. - nicht nachweisbar; k. A. - keine Angabe; ¹ US EPA (2012): Grenzwert als Medianwert (7 Tage) für Kalifornien und Washington; ² US EPA (2012): Grenzwert als Medianwert (7 Tage) für Washington; ³ US EPA (2012): allgemeine Richtlinien, Grenzwert als Medianwert (7 Tage); ⁴ US EPA (2012): Grenzwert als geometrischer Mittelwert (30 Tage) für Texas; ⁵ Ministry of Construction (1981), Tokyo, Japan; ⁶ Ministry of Construction and Advanced Treatment Council (1990), Tokyo, Japan; ⁷ Berliner Senatsverwaltung für Stadtentwicklung (2007); ⁸ DIN 19650; ⁹ nicht zum Verzehr bestimmte Gewächshauskulturen, Grünland bzw. Grünfütterpflanzen bis 2 Wochen vor dem Schnitt oder der Beweidung; ¹⁰ Norm GB/T 18920-2002; ¹¹ Norm GB/T 18921-2002; ¹² Norm GB/T 19772-2005: Beimischung im Grundwasserleiter; ¹³ Richtlinie 2006/7/EG: ausgezeichnete Badegewässerqualität (Binnengewässer)

2.2 Desinfektionsverfahren

Bereits im Verlauf der Abwasserreinigung ohne gezielte Desinfektion nimmt die mikrobiologische Belastung je nach Wirksamkeit der einzelnen Verfahrensstufen ab. So wird die Konzentration von Fäkalcoliformen schon in der biologischen Stufe um bis zu 2 log-Stufen gesenkt (Crook, 1992). Auch Viren werden in ähnlicher Größenordnung durch Adsorption an den Schlamm reduziert. Wurmparasiten bzw. deren Dauerformen werden zu 70...90 % im Schlamm der mechanischen Stufe angereichert (Merkblatt ATV-M 205, 1998). Um jedoch die geforderten spezifischen hygienischen Grenzwerte/Richtwerte zum Schutz der Gesundheit des Menschen bei der Wiederverwendung bzw. bei der Einleitung von gereinigtem Abwasser in sensible und für Erholungszwecke genutzte Gewässer einzuhalten, ist eine weitere Reduzierung der mikrobiologischen Belastung durch Desinfektion zwingend erforderlich. Im streng medizinischen Sinn wird unter Desinfektion die "Abtötung oder Inaktivierung von Pathogenen (um mindestens 5 log-Stufen bei 10^6 Keimen pro mL), so dass keine Gesundheitsgefahr/Infektionsrisiko mehr ausgeht", verstanden. Im Allgemeinen wird jedoch in der Abwasserreinigung der Begriff der Desinfektion als "Behandlung von Abwasser oder Schlamm zum Vermindern der Aktivität von Krankheitserregern unter einen vorgegebenen Wert" nicht so streng definiert (DIN EN 1085). Die Reduzierung von Pathogenen kann auch durch deren Rückhalt (z. B. Membranfiltration) bewirkt werden.

Zur Abwasserdesinfektion stehen prinzipiell naturnahe und technische Verfahren zur Verfügung (Tab. 2.3).

Tab. 2.3: Einteilung potentieller Verfahren zur Abwasserdesinfektion

Naturnahe Verfahren	Technische Verfahren		
	Physikalische Verfahren	Chemische Verfahren	Elektrochemische Verfahren
<ul style="list-style-type: none"> • Pflanzenbeete, Pflanzenkläranlagen • Schönungsteiche • Bodenfiltration 	<ul style="list-style-type: none"> • UV-Bestrahlung • Ultraschall • thermische Behandlung • Membranfiltration 	<ul style="list-style-type: none"> • Chlorung • Ozonung • Peressigsäure • Wasserstoffperoxid 	<ul style="list-style-type: none"> • <i>Ex-situ</i>-Erzeugung von freiem Chlor (aus NaCl-Sole) • <i>In-situ</i>-Erzeugung von freiem Chlor (direkt im zu desinfizierenden Abwasser)

Die Desinfektionsleistung wird im Wesentlichen durch die

- organische Belastung (DOC, TOC, BSB₅), suspendierte Stoffe (TSS) und Trübung des Abwassers (naturnahe und technische Verfahren),

- Ausgangskonzentration, Art und Eigenschaften der Pathogene (naturnahe und technische Verfahren),
- Art und Eigenschaften des Desinfektionsmittels bzw. des Desinfektionsverfahrens (technische Verfahren) und
- Konzentration des Desinfektionsmittels bzw. Bestrahlungsstärke und Einwirkzeit (technische Verfahren)

bestimmt (Merkblatt ATV-M 205, 1998) sowie durch die Reduktionsrate, welche in der Regel in log-Stufen oder Zehnerpotenzen angegeben wird, bewertet. In der Praxis kann somit die letale Wirkung verzögert (lag-Phase) und/oder eine Reduktion der Inaktivierungsrate (Tailing) mit zunehmender Desinfektionsmittelkonzentration (Bestrahlungsdosis) eintreten.

Für den Einsatz von Desinfektionsverfahren innerhalb des häuslichen, dezentralen Bereichs werden spezifische Anforderungen gestellt, so dass hier nur wenige von den in der Tabelle 2.3 dargelegten potentiellen Verfahren in Frage kommen. Im Mittelpunkt dieser Anforderungen stehen einerseits

- moderate Betriebs- und Investitionskosten,
- ein zuverlässiger, wartungsarmer Betrieb, Gewährleistung der geforderten Desinfektionsleistung innerhalb der üblichen Wartungsintervalle (3...6 Monate),
- ein geringer Platzbedarf durch kompakte Bauweise,
- eine einfache Integration in bestehende Kleinkläranlagen,
- eine einfache und bequeme Handhabbarkeit

und andererseits

- eine hohe Desinfektionsleistung mit Wirkdepot,
- die Vermeidung der Lagerung von Chemikalien,
- die Lagerfähigkeit des Brauchwassers,
- die Minimierung toxischer Desinfektionsnebenprodukte,
- die schnelle und einfache analytische Bestimmung des Desinfektionsmittels sowie
- die Toleranz gegenüber einer Schwankungsbreite von Betriebsparametern.

Im Allgemeinen stellen **naturnahe Verfahren** umweltfreundliche Desinfektionsmethoden dar (kein Einsatz und Lagerung von Chemikalien, keine Bildung von unerwünschten Desinfektionsnebenprodukten). Jedoch wirken sich unter anderem der enorme Flächenbedarf und eine hohe Verdunstungsrate nachteilig aus. Weiterhin führen Praxiserfahrungen (teilweise mit halbtechnischen Anlagen), Wirtschaftlichkeits- und Umweltschutzgründe sowie das hohe Gefährdungspotential für den Anwender zum Schluss, dass **chemische Verfahren** zur dezentralen Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser nur stark eingeschränkt anwendbar oder ungeeignet sind. So erfordert der Einsatz von ätzenden (Natriumhypochlorit, Peressigsäure, Wasserstoffperoxid), human- und/oder ökotoxischen (Ozon, Chlordioxid,

Chlorgas, Natriumhypochlorit, Peressigsäure) sowie explosiven Chemikalien (Chlordioxid) umfangreiche technische Sicherheitsmaßnahmen und geschultes Fachpersonal. Zudem zeichnen sich einige chemische Verfahren, wie z. B. die Ozonung und der Einsatz von Peressigsäure, durch hohe Investitions- und/oder Betriebskosten aus (Merkblatt DWA-M 205, 2013; Popp, 1999; Chrobok, 2003; Cornel et al., 2006). Des Weiteren wirkt sich die Bildung von unerwünschten anorganischen und organischen Desinfektionsnebenprodukten nachteilig aus. So können bei der Chlorung unter anderem Trihalomethane (THM), halogenierte Essigsäuren, halogenierte Acetonitrile, Cyanchlorid, Chloramine, Chlorphenole, Haloketone, Haloaldehyde usw. entstehen (Singer et al., 2002; Koukouraki et al., 2002). Bei der Ozonung ist die Bildung von unter anderem Aldehyden, Carbonsäuren, Hydroxysäuren, Estern, Epoxiden, Peroxiden, bromorganische Verbindungen, Bromat usw. als kritisch anzusehen (Merkblatt DWA-M 205, 2013; von Gunten, 2003). Weiterhin besitzen einige chemische Desinfektionsmittel, wie z. B. Ozon, Peressigsäure oder Wasserstoffperoxid, kein Wirkdepot. Dies kann zur unerwünschten Wiederverkeimung des behandelten Abwassers beitragen.

Physikalische Desinfektionsverfahren erweisen sich zwar als umweltschonend, jedoch eignen sich die thermische Behandlung sowie die Anwendung von Ultraschall eher dort, wo eine begrenzte Menge an Abwasser anfällt. Zudem erweisen sich ultraschallunterstützte Desinfektionsverfahren aufgrund der um mehrere Größenordnungen höheren Betriebs- (v. a. Energiekosten) und Investitionskosten im Vergleich zu chemischen Desinfektionsverfahren als unwirtschaftlich und somit ungeeignet (Jyoti et al., 2001).

Daher werden gegenwärtig im dezentralen Bereich vor allem Membran- und UV-Verfahren eingesetzt, wobei die Deutsche Vereinigung für Wasserwirtschaft, Abwasser und Abfall e. V. (DWA) der UV-Bestrahlung generell den Vorzug gibt (Merkblatt DWA-M 205, 2013). Entscheidender Nachteil beider Verfahren ist jedoch das fehlende Wirkdepot. Zudem erweisen sich die hohen Betriebs- und Investitionskosten der Membranverfahren als nachteilig (Popp, 1999, 2001; Cornel et al., 2006). Des Weiteren weisen die Membranmodule eine hohe Empfindlichkeit gegenüber der in Kleinkläranlagen üblicherweise stark schwankenden hydraulischen Belastung auf.

Ein neuartiges Verfahren im dezentralen Bereich stellt die elektrochemische Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser dar. Da die Untersuchung der Anwendbarkeit dieses Verfahrens sowie der Kombination aus UV-Desinfektion und Elektrolyse zur dezentralen Gewinnung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser im Mittelpunkt dieser Dissertation standen, beschränken sich die Kapitel 2.2.1 und 2.2.2 auf die Darlegung des derzeitigen Wissensstands zu diesen Verfahren. Zusammenfassend wird das daraus resultierende Forschungspotential, an das die vorliegende Dissertation anknüpft, dargelegt und somit auf eine Bewertung in diesem Kapitel verzichtet.

2.2.1 UV-Desinfektion

2.2.1.1 Allgemeiner Überblick

Die UV-Desinfektion ist als eine zuverlässige Alternative zu chemischen Desinfektionsverfahren in der Trinkwasseraufbereitung bekannt. Dabei erweisen sich

- die geringen Investitions- und Betriebskosten,
- der geringe Energieverbrauch,
- die hohe Desinfektionsleistung,
- die Reduktion auch von chlorresistenten Keimen (u. a. Viren, Protozoen: *Cryptosporidium parvum*, *Giardia lamblia*) (Lazarova et al., 2004),
- die vom pH-Wert und von der Temperatur unabhängige Entkeimung sowie
- keine Desinfektionsnebenproduktbildung selbst bei UV-Bestrahlungsdosen bis zu 25.000 J m^{-2} (Liberti et al., 2002)

als vorteilhaft.

Im Jahr 1910 wurde die UV-Bestrahlung erstmals in Marseille und seit den 80er Jahren in Europa zur Trinkwasserdesinfektion eingesetzt (Henry et al., 1910; Kruithof et al., 1992). Seit Mitte der 70er Jahre wird diese zudem zur Desinfektion von Abwasser verwendet. In Nordamerika sind einige hundert Anlagen in Betrieb, die zunehmend bestehende Chlorungsanlagen ersetzen. In Deutschland existieren einige UV-Anlagen zur Desinfektion des Kläranlagenablaufes in Cuxhaven, in Cismar, in Norden und in Wyk auf Föhr. Auf mehreren Kläranlagen wird ein Teilstrom entnommen und zur Nutzung als Betriebswasser UV-desinfiziert. Auch in der dezentralen Abwasserdesinfektion sind UV-Anlagen Stand der Technik.

Bei der biologischen Reinigung durch Abwasserteiche spielt die solare Desinfektion durch Einwirkung von UV-B-Strahlung ($\lambda = 280\text{...}315 \text{ nm}$, Schädigung der DNA und oxidative Zerstörung durch Bildung reaktiver Radikale in der Zelle) neben der Sedimentation eine zentrale Rolle (He et al., 2002; Khaengrang et al., 2005; Pfeifer et al., 2005). Im Gegensatz zur natürlichen Insolation wird bei der technischen UV-Desinfektion gezielt der UV-C-Bereich ($\lambda = 100\text{...}280 \text{ nm}$), bei dem die Desinfektionswirkung besonders effektiv ist, eingesetzt. So werden enteritische Bakterien, Viren, Sporen und parasitäre Zysten effizient reduziert bzw. eliminiert (Lazarova et al., 1998; Liberti et al., 2000; Rajala et al., 2003). Die überaus starke biologische Wirksamkeit des UV-C-Lichtes ist auf seine Wechselwirkungen mit biologischen Makromolekülen, das heißt mit Proteinen, Nukleinsäuren sowie ihren Monomeren zurückzuführen. Durch die Absorption der energiereichen UV-Strahlung kommt es deshalb im Bereich der Nukleinsäuren der DNA bzw. RNA von Mikroorganismen zu Schädigungen durch Auftrennung von Wasserstoffbrücken und Bildung sogenannter Dimere, besonders unter den benachbarten Pyrimidinbasen Cytosin und Thymin. Dadurch ist bei der Zellteilung die Weitergabe der Erbinformation der DNA oder die Bildung von Enzymen für den Stoffwechsel

der Zellen gestört, was zur Inaktivierung oder zum Absterben der Zellen führt (ATV-Handbuch, 1997). Am wirksamsten ist die UV-C-Strahlung mit einer Wellenlänge von 260...265 nm, dem Absorptionsmaximum der Nukleinsäuren (Beggs, 2002). Daher senden die in der Regel eingesetzten Quecksilberniederdruck(hochleistungs)strahler monochromatische UV-C-Strahlung bei einer Wellenlänge von 253,7 nm nahe diesem Absorptionsmaximum der Nukleinsäuren aus, wohingegen Quecksilbermitteldruckstrahler einen Wellenlängenbereich von 200...300 nm abdecken. Aufgrund der höheren Ausbeute an bakterizider UV-C-Strahlung und der längeren Lebensdauer kommen in Abwasserdesinfektionsanlagen häufig Quecksilberniederdruckstrahler zum Einsatz. Alternativen zu den quecksilberhaltigen UV-Lampen stellen gepulste und LED-UV-Lampen sowie Excimer-Laser dar. Es existieren jedoch nur wenige Studien zur Anwendung im Abwasserbereich. Laser sind viel zu groß, zu teuer und die Effizienz der LED-UV-Strahler ist derzeit noch zu gering, um eine wirtschaftliche Desinfektion von Wässern zu realisieren (Sedlmeier, 2008). Gepulste UV-Lampen zeigen jedoch großes Potential, Phagen und *E. coli* effektiver abzutöten als unter Einsatz von kontinuierlich emittierenden Quecksilberniederdruck- und Quecksilbermitteldruckstrahlern (Oppenlander, 2007; Bohrerova et al., 2008).

Die Keimzahlreduktion wird einerseits vorwiegend vom Mikroorganismus selbst bestimmt. Dabei hängt die UV-Empfindlichkeit

- vom physiologischen Status (vegetative oder Dauerform),
- vom Wachstumsstadium,
- vom DNA bzw. RNA-Gehalt,
- von der Zellgröße sowie
- von der optischen Dichte ab (Pfeiffer, 1993; Sommer, 1996).

Andererseits stellt die UV-Bestrahlungsdosis (H), die sich aus dem Produkt von Bestrahlungsdauer und mittlerer Bestrahlungsstärke (E_m) zusammensetzt, einen entscheidenden verfahrensspezifischen Einflussparameter dar. Die Bestrahlungsstärke hängt dabei

- von der Wasserqualität (abfiltrierbare Stoffe, Trübung, Transmission, UV-absorbierende organische und anorganische Stoffe usw.),
- von der Strahlerleistung (wird v. a. durch die Art des Strahlers, der Temperatur und der Strahlernutzungsdauer bestimmt) sowie
- von der Transmission, der Reflektion und der Brechung des UV-Lichtes beim Passieren des Quarzglasschutzrohres (wird durch Beläge beeinflusst) ab.

Unter realen Abwasserverhältnissen weicht der Verlauf der UV-Desinfektion erheblich vom idealen ab. Hierfür sind häufig einerseits unzureichende hydraulische Verhältnisse verantwortlich. Aufgrund des exponentiellen Zusammenhangs zwischen der Inaktivierungsrate und der Bestrahlungsdosis (Kinetik erster Ordnung, Merkblatt DWA-M 205, 2013) sind eine mög-

lichst ideale Pfpfenströmung und ideale Quervermischung erforderlich. Eine ausreichende Quervermischung ist unter anderem bei turbulenten Strömungsverhältnissen gegeben. Bei laminaren Strömungsbedingungen besteht die Gefahr, dass nicht jedes Volumenelement einer entsprechenden Mindestbestrahlung ausgesetzt wird. Kurzschlussströmungen bis zu 1 % können weiterhin die Desinfektionsleistung verringern (Merkblatt ATV-M 205, 1998). Andererseits werden Mikroorganismen vor allem durch Anlagerung an oder Einlagerung in Partikelverbände sowie durch Abschattungseffekte von frei suspendierten Mikroorganismen vor UV-Strahlung geschützt (Ho et al., 1981; Darby et al., 1993, 1995; Cairns, 1993; Whitby et al., 1993; Emerick et al., 1999; Schöler et al., 2002). Dabei können Partikel UV-Licht absorbieren, reflektieren, brechen oder streuen (Mamane, 2008). Die im biologisch gereinigten Abwasser enthaltenden abfiltrierbaren Stoffe (TSS) werden vor allem durch den Abrieb von Belebtschlamm eingetragen. Ergebnisse aus verschiedenen Studien zur UV-Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser zeigen, dass bei einer geringen bis moderaten TSS-Konzentration von $< 5 \dots 26 \text{ mg L}^{-1}$ eine UV-Bestrahlungsdosis von $200 \dots 500 \text{ J m}^{-2}$ zur *E. coli*-Reduktion um $3 \dots 5 \text{ log}$ Stufen und $300 \dots 800 \text{ J m}^{-2}$ zur Reduktion der Gesamtcoliforme im vergleichbaren Ausmaß erforderlich ist (Gehr et al., 1998; Bourrouet et al., 2001; Savoye et al., 2001; Tessele et al., 2005; Gomez et al., 2007). Im Merkblatt DWA-M 205 (2013) wird dagegen eine Mindest-Bestrahlungsdosis von $300 \dots 450 \text{ J m}^{-2}$ für biologisch gereinigtes Abwasser mit einer TSS-Konzentration von $5 \dots 20 \text{ mg L}^{-1}$ angegeben. Der Effekt der bakteriellen Anlagerung an bzw. Einlagerung in Partikel auf die Desinfektionsleistung wurde zwar in einigen Studien untersucht, jedoch wird dieser kontrovers diskutiert und ist bis heute nicht vollständig aufgeklärt (Parker et al., 1995; Gehr et al., 1998; Loge et al., 1996, 1999, 2001; Emerick et al., 1999, 2000; Jolis et al., 2001). Wechselwirkungen zwischen Partikel und Mikroorganismen sowie unter Mikroorganismen selbst (Mikroorganismenaggregate) sowie die Heterogenität der Zellpopulation führen unter anderem zum sogenannten Tailing (Emerick, 1999; Loge et al., 2001; Bohrerova et al., 2006; Beltran et al., 2008; Pennell et al., 2008). Partikelassoziierte Mikroorganismen können trotz zehnfacher Erhöhung der UV-Bestrahlungsstärke überleben, da die Absorption der UV-Strahlung durch Partikel in gereinigtem Abwasser über 10.000 mal größer als durch die Bulk-Lösung ist und somit das Durchdringen von UV-Licht blockiert wird (Asano et al., 2007). Die Beschreibung eines statistisch signifikanten Zusammenhangs zwischen TSS-Konzentration, Transmission oder Trübung und Desinfektionsergebnis ist umstritten. So stellen unter anderem Scheible et al. (1985), Whitby et al. (1993) und Emerick et al. (1999, 2000) einen mathematischen Zusammenhang fest. Studien anderer Forschungsgruppen bestätigten dies jedoch nicht (Zukovs et al., 1986; Gelzhäuser, 1989; Buderer, 1994; Madge et al., 2006). Es wird zudem auf die Partikelgrößen(Verteilung) und auf die Stärke der Anlagerung der Bakterien an die Partikel hingewiesen. Auch dies wird in verschiedenen Publikationen kontrovers diskutiert. So zeigt

ten Qualls et al. (1985), dass die Zahl der überlebenden Coliforme besser mit der Anzahl der Partikel $> 20 \mu\text{m}$ bzw. $40 \mu\text{m}$ als mit der Anzahl der Partikel $> 10 \mu\text{m}$ korreliert. Darby et al. (1999) und Emerick et al. (1999) geben dagegen eine kritische Partikelgröße von ca. $10 \mu\text{m}$ und Schöler et al. (2002) von $20 \mu\text{m}$ (kläranlagenspezifisch) an. Auch Wang et al. (2006) wiesen eine Reduktion der Desinfektionsleistung hinsichtlich der Fäkalcoliforme bei Partikelgrößen von $> 10 \mu\text{m}$ nach. Templeton et al. (2005) schlussfolgerten für den Schutz von Viren eine Partikelgröße von $< 2 \mu\text{m}$ und für den Schutz von Protozoen gaben Amoah et al. (2005) eine Größe von $> 25 \mu\text{m}$ an. Loge et al. (1999) führen dagegen an, dass der Schutz der in die Partikel eingelagerten Mikroorganismen unabhängig von der Partikelgröße ist, da diese eine unterschiedlich hohe Porosität aufweisen. Mit dem Parameter Partikelgrößenverteilung und Partikelkonzentration können die porösen und nicht porösen Partikel bzw. die Partikel mit eingelagerten Mikroorganismen und ohne eingelagerte Mikroorganismen messtechnisch nicht unterschieden werden. Es werden unspezifisch alle Partikel ermittelt. Daher schlussfolgert Schöler (2002), dass die Partikelgrößenverteilung und Partikelkonzentration zur Beschreibung der erzielbaren Desinfektionsleistung ungeeignet sind. Dieses Ergebnis ist jedoch im Vergleich zu den Erkenntnissen anderer Autoren (Whitby et al., 1993; Emerick et al., 1999, 2000; Asano et al., 2007) und Empfehlungen der DWA (Merkblatt DWA-M 205, 2013) als kritisch zu betrachten. Nelson (2000) schlussfolgerte, dass je stärker Mikroorganismen an Partikel gebunden sind, desto besser sind diese vor UV-Strahlung geschützt. Die Autoren erzielten trotz sehr hoher TSS-Konzentrationen von $79,8 \text{ mg L}^{-1}$ und 170 mg L^{-1} eine Reduktion von Gesamtcoliformen von 4 bzw. 5 log Stufen bei einer applizierten UV-Bestrahlungsdosis von $> 100 \text{ J m}^{-2}$, da nur 0,8 % der Partikel mit einem Durchmesser von $11 \dots 80 \mu\text{m}$ und 1 % der Partikel mit einem Durchmesser von $> 80 \mu\text{m}$ mit *E. coli* assoziiert waren. Generell stellt die experimentelle und mathematische Beschreibung des Einflusses von abfiltrierbaren Stoffen bzw. der Trübung auf die Desinfektionsleistung eine komplexe und komplizierte Thematik dar, wobei weiterer Forschungsbedarf besteht.

Neben der Konzentration an abfiltrierbaren Stoffen und der Transmission des Abwassers wird die UV-Desinfektionsleistung von organischen und anorganischen Wasserinhaltsstoffen beeinflusst. So absorbieren gelöste Organika mit konjugierten Ringsystemen, aber auch anorganische Stoffe, wie z. B. Eisenionen, Nitrit oder Manganionen, UV-Strahlung. Organische und anorganische Abwasserinhaltsstoffe fördern zudem Scaling- und Foulingprozesse. Die Belagbildung (Fouling) auf den Quarzglasschutzrohren bei der Abwasserdesinfektion ist von Popp et al. (1998) ausführlich beschrieben worden. Die Autoren wiesen alle Formen von Fouling, wie

- *anorganisches Fouling* (Scaling), durch Deposition von schwerlöslichen Verbindungen, vor allem des Eisens, Aluminiums und Mangans,

- *organisches Fouling*, durch Anlagerung von lipophilen Makromolekülen (teilweise mikrobielle Stoffwechselprodukte),
- *partikuläres Fouling*, durch Ablagerung von Kolloiden, wie Huminstoffen, Tonpartikeln usw. sowie
- *Biofouling*, durch die Adsorption mikrobieller Stoffwechselprodukte wird die Anlage- rung und das Wachstum von Mikroorganismen gefördert (Biofilmbildung),

nach. Mikrobiologische Untersuchungen zeigten, dass selbst unter UV-Dauerbestrahlung ein Überleben und teilweise sogar eine gewisse Vermehrung von Bakterien im Biofilm auf den Schutzrohren von UV-Strahlern im Abwasserstrom möglich sind. Daher besteht die Notwendigkeit, diese zu reinigen. Dazu bedient man sich vor allem einer Kombination aus mechanischen (spezielle Wischer) und chemischen (anorganische Säure) Techniken (Merkblatt DWA-M 205, 2013). Weiterhin ist die Anwendung von Ultraschall, Hochdruckwasser- und Luftreinigung möglich (US EPA, 1999).

2.2.1.2 Licht- und Dunkelreparatur von reversibel UV-geschädigten Bakterien

Vor allem gramnegative Mikroorganismen (Fäkalcoliforme, Salmonellen, *Proteus*-Bakterien usw.) sind in der Lage, die durch UV-Bestrahlung erzeugten Dimere der Bakterien-DNA durch zwei unterschiedliche Mechanismen zu reparieren (Lindenauer et al., 1994; Oguma et al., 2001; Zimmer et al., 2002; Queck et al., 2008a). Wie die Bezeichnungen bereits verdeutlichen, erfordert die Photoreaktivierung Licht, dagegen läuft die Dunkelreparatur unter Lichtausschluss ab (Abb. 2.1).

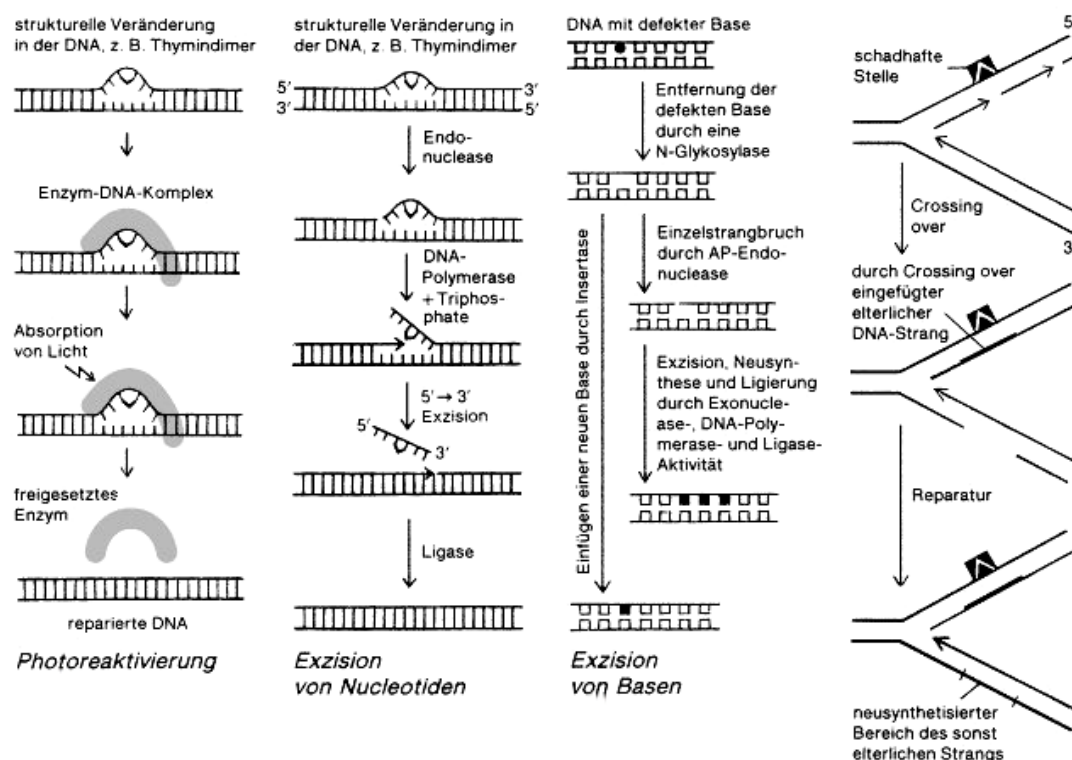


Abb. 2.1: DNA-Reparatur durch Licht- und Dunkelreparaturmechanismen (Brechner et al., 2001)

Beide Mechanismen sind enzymatische Prozesse. An der Dunkelreparatur ist eine große Anzahl von unterschiedlichen Enzymen beteiligt. Die Photoreaktivierung wird vor allem durch das Enzym Photolyase katalysiert und beinhaltet zwei Teilschritte. Im ersten Schritt wird ein Enzym-Dimer-Komplex gebildet. Der zweite Schritt ist durch die Monomerisierung der Dimere sowie durch das Freisetzen der reparierten DNA und des Enzyms Photolyase charakterisiert und erfordert Licht in einem Wellenlängenbereich zwischen 310 nm und 490 nm (Lindenauer et al., 1994). Die Dunkelreparatur ist ein sehr komplexer Prozess, bei dem die geschädigte DNA nicht direkt umgewandelt wird, sondern durch neue, ungeschädigte DNA ersetzt wird. Bei den meisten Bakterien spielt diese nur eine untergeordnete Rolle. Auch Viren, die eine DNA besitzen (z. B. Adenovirus), können sich reaktivieren, indem diese die Reparaturenzyme und damit die Reparaturmechanismen der Wirtszellen nutzen (Hijnen et al., 2006).

Derzeit existieren nur wenige Studien zu verschiedenen Einflussfaktoren auf die Reaktivierungsprozesse von Bakterien in biologisch gereinigtem Abwasser. Chan et al. (1995) untersuchten den Effekt der Temperatur und des Salzgehaltes auf die Reaktivierung von *E. coli* in synthetischem Meerwasser ($C_{NaCl} = 30 \text{ g L}^{-1}$) und in verdünnten Salzlösungen. Dabei betrug die maximale Photoreaktivierung 44 % der Ausgangskeimzahl bei einer Temperatur von 15 °C und unter isotonischen Bedingungen. Das Ausmaß der Photoreaktivierung sank mit zunehmenden Salzgehalt. Bei einem Salzgehalt von 30 g L⁻¹ betrug der Anteil der photoreaktivierten *E. coli* an der Ausgangskeimzahl lediglich 5 %, da die Bakterien bei hohem Salzgehalt zusätzlichem Stress ausgesetzt sind, wodurch die isotonischen Bedingungen innerhalb der Zelle nicht aufrechterhalten werden können (Zelle platzt). Zudem beobachteten die Autoren eine Verdreifachung der Reaktivierungsrate von 0,01 min⁻¹ auf 0,03 min⁻¹ bei Verdopplung der Temperatur von 15 °C auf 30 °C unter isotonischen Bedingungen. Dabei ließ sich der Einfluss der Temperatur auf die Photoreaktivierungsgeschwindigkeitskonstante mit der Arrhenius-Gleichung beschreiben. Die Autoren zeigten mit ihren Untersuchungen, dass der Einfluss des Salzgehaltes auf die Photoreaktivierung insgesamt größer als der Temperatureinfluss war. Auch Salcedo et al. (2007) und Locas et. al. (2008) beobachteten eine zunehmende Reaktivierung von Fäkalcoliformen bzw. *E. coli* in UV-bestrahltem, biologisch gereinigtem Abwasser mit steigender Temperatur ($T = 5\text{...}30 \text{ °C}$). Locas et. al. (2008) wies dabei eine Photoreaktivierung der *E. coli* von 0,9 log-Stufen bei 25 °C und dagegen von 0,4 log-Stufen bei 4 °C nach. Queck et al. (2008b) beobachteten eine maximale Reaktivierung von *E. coli* zwischen 23 °C und 37 °C.

Da die Umwandlung der durch UV-Bestrahlung erzeugten Dimere der Bakterien-DNA Licht im sichtbaren Bereich erfordert, stellt sich weiterhin die Frage, ob, die Photoreaktivierung durch die Lichtintensität bzw. die Lichtdosis beeinflusst wird. Jedoch existieren zu diesem Thema z. T. widersprüchliche Studien im Abwasserbereich. Zudem wird die Vergleichbarkeit

der Ergebnisse von einigen Studien erschwert, da die Lichtintensität bei 360 nm (E_{360}) entweder mit einem Dosimeter in $W\ m^{-2}$ oder mit einem Luxmeter in Lux gemessen wurde. Die Lichtdosis ergibt sich dann aus dem Produkt der Lichtintensität und der Kontaktzeit. So stellten Kashimada et al. (1996) unter anderem fest, dass die Photoreaktivierungsgeschwindigkeitskonstante von Fäkalcoliformen von annähernd $0,03\ min^{-1}$ auf $0,1\ min^{-1}$ mit Erhöhung der Lichtdosis von $1\ J\ m^{-2}$ auf ca. $40\ J\ m^{-2}$ steigt. Jedoch wurde die maximale Zahl an reaktivierten Fäkalcoliformen nicht von der Lichtintensität beeinflusst. Auch Baron et al. (1996) stellten keinen Zusammenhang zwischen der durchschnittlichen Lichtdosis ($1,9...55\ J\ m^{-2}$) und dem Reaktivierungsgrad fest. Tosa et al. (1999) beobachteten dagegen bei der Zunahme der Lichtdosis von $276\ J\ m^{-2}$ auf $1.656\ J\ m^{-2}$ eine Steigerung der reaktivierten enterohä-morrhagischen *E. coli* (EHEC O26) um 2 log-Stufen. Auch Chtrek et al. (1991) und Lindenauer et al. (1994) beobachteten eine zunehmende Photoreaktivierung mit steigender Lichtdosis. Locas et al. (2008) wiesen eine Zunahme der *E. coli*-Photoreaktivierung von 0,4 log-Stufen auf 0,7 log-Stufen mit einer 3,5-fachen Erhöhung der Lichtintensität von 1.600 Lux auf 5.600 Lux nach. Bei einer Lichtintensität von 70.000 Lux (Sonnenlicht, $t = 6\ h$) war das Ausmaß der Photoreaktivierung mit dem bei 5.600 Lux identisch. Queck et al. (2008b) beobachteten einen Maximalwert an reaktivierten *E. coli* überwiegend bei 11.500 Lux ($t = 4\ h$). Sonnenlicht mit einer Lichtintensität von $> 12.000\ Lux$ verursachte zudem eine Verringerung der *E. coli*-Konzentration um annähernd eine log-Stufe.

Zum Einfluss des pH-Wertes auf die bakterielle Reaktivierung existieren derzeit keine Untersuchungen. Studien von Sancar et al. (1985) zeigen, dass sich die Bindung der *E. coli*-DNA-Photolyase an UV-bestrahlte DNA bei einem pH-Wert von 7,5 und einer NaCl-Konzentration von $125\ mmol\ L^{-1}$ als optimal erweist.

Der Einfluss der UV-Dosis und der Art des UV-Strahlers auf die Reaktivierung wurde dagegen vielfach untersucht, jedoch sind die Ergebnisse einiger Studien widersprüchlich. So kann das Ausmaß der Schädigung der Mikroorganismen unter Verwendung von Mitteldruckstrahlern erhöht und somit deren Reaktivierung minimiert oder verhindert werden. Dies ist dadurch begründet, dass da die polychromatische UV-Strahlung nicht nur die DNA, sondern auch Enzyme und andere Moleküle, die zur Photoreaktivierung erforderlich sind, schädigt (Oguma et al., 2002; Zimmer et al., 2002; Kalisvaart, 2004; Locas, et al., 2008). Jedoch zeigt sich in einigen Studien, dass dies sehr stark von der Art und der Wachstumsphase der Bakterien abhängt (Belosevic et al., 2001; Queck et al., 2008a). Hu et al. (2008) zeigten zudem, dass die Aktivität der Photolyase, die Mitteldruckstrahlern ausgesetzt ist, geringer als bei Niederdruckstrahlern ist. Queck et al. (2008a) wiesen eine Reaktivierung der *E. coli* sowohl bei Niederdruck- als auch bei Mitteldruckstrahlern nach, wobei die Autoren keinen beträchtlichen Einfluss des Mitteldruckstrahlers auf den Reaktivierungsgrad verschiedener *E. coli*-Stämme im Vergleich zum Einsatz eines Niederdruckstrahlers beobachteten. Auch Guo et al.

(2009) beobachteten zwar keinen Einfluss des Strahlertyps auf das Ausmaß der Reaktivierung von Gesamtcoliformen in UV-bestrahltem ($H = 50 \dots 250 \text{ J m}^{-2}$), biologisch gereinigtem Abwasser. Jedoch ermittelten die Autoren eine um 30 % geringere Photoreaktivierung von reinen *E. coli*-Kulturen in einer 0,9%-igen Salzlösung beim Einsatz von Mitteldruckstrahlern ($H = 50 \text{ J m}^{-2}$). Oguma et al. (2004) stellten fest, dass die Reduktionseffizienz von *Legionella pneumophila* unabhängig vom Strahlertyp ist. Auch Belosevic et al. (2001) beobachteten die Fähigkeit der DNA-Reparatur von *Giardia spp.* trotz Einsatz von Mitteldruckstrahlern. Zimmer et al. (2003) konnten keinen detektierbaren Beweis zur Licht- und Dunkelreparatur nach einer UV-Bestrahlung ($H = 10 \text{ J m}^{-2}$ und 30 J m^{-2}) mittels Niederdruck- und Mitteldruckstrahler von *Cryptosporidium parvum* oocysts, welcher durch die Infektivität mittels HCT-8-Zellen bestimmt wurde, finden.

Bis heute wird die Frage, ob der Einsatz eines Mitteldruckstrahlers tatsächlich zur Minimierung der bakteriellen Reaktivierung geeignet ist, nicht eindeutig in den Studien geklärt. Jedoch erweist sich der Einsatz von Mitteldruckstrahlern zur Abwasserdesinfektion aufgrund des höheren Potentials zur Belagbildung auf den Quarzglasrüllrohren als nachteilig.

Weiterhin verhält sich die UV-Bestrahlungsdosis oft invers zum Ausmaß der Reaktivierung. So stellten Wang et al. (2012) eine Reduzierung der Photoreaktivierung von heterotrophen Bakterien und Gesamtcoliformen von 50 % auf annähernd 5 % mit Verdreifachung der UV-Bestrahlungsdosis von 40 J m^{-2} auf 120 J m^{-2} fest (Trübung des biologisch gereinigten Abwassers = 0,2 NTU). Harris et al. (1987) beobachteten unter anderem eine Verringerung der *E. coli*-Photoreaktivierung um 1,4 log-Stufen bei Verdopplung der UV-Bestrahlungsdosis von 50 J m^{-2} auf 100 J m^{-2} . Auch Sanz et al. (2007) untersuchten die Photo- und Dunkelreaktivierung von Gesamtcoliformen, Fäkalcoliformen und fäkalen Streptokokken in UV-bestrahltem ($H = 500 \dots 2000 \text{ J m}^{-2}$), biologisch gereinigtem Abwasser. Die Autoren ermittelten einen exponentiellen Zusammenhang zwischen maximalem Reaktivierungsgrad und UV-Bestrahlungsdosis. Baron et al. (1996) wiesen eine Photoreaktivierung der *E. coli* von 0,3...0,7 log-Stufen bei UV-Bestrahlungsdosen von $< 440 \text{ J m}^{-2}$ nach. Bei UV-Bestrahlungsdosen von $> 440 \text{ J m}^{-2}$ sank die Photoreaktivierung auf 0,1...0,3 log-Stufen. Enterokokken zeigten dagegen keine Reaktivierung, was zudem in Untersuchungen von Locas et al. (2008) bestätigt wurde. Yoon et al. (2007) stellten keine signifikante Reaktivierung der Gesamtcoliforme, Fäkalcoliforme und *E. coli* bei der Erhöhung der UV-Bestrahlungsdosis von 60 J m^{-2} auf 160 J m^{-2} fest.

Verschiedene Studien zeigen zudem, dass die Reaktivierung zu einer langsameren Inaktivierungskinetik führt. Das bedeutet, dass höhere UV-Bestrahlungsdosen erforderlich sind, um den gleichen Inaktivierungsgrad zu erzielen. So schlussfolgerte Bernhard (1994) für *E. coli*, *Yersinia enterocolitica*, *Salmonella typhi* und *Vibrio cholerae* eine um den Faktor 1,8...4,2 höhere UV-Bestrahlungsdosis um eine Reduktion von 4 log-Stufen zu erzielen. Ein ähnliches

Ergebnis im Hinblick auf die *E. coli*-Reduktion wurde durch Hoyer (1998) und Clauß et al. (2005) bestätigt. Tosa et al. (1999) ermittelten eine 2,2-fache Erhöhung der UV-Bestrahlungsdosis von 50 J m⁻² auf 110 J m⁻² für eine Reduktion von enterohämorrhagischen *E. coli* (EHEC O26) um eine log-Stufe.

Insgesamt lässt sich feststellen, dass zum derzeitigen Zeitpunkt verschiedene Einflussfaktoren auf die Reaktivierungsprozesse, vor allem auf die Dunkelreparatur, nur unzureichend geklärt und z. T. widersprüchlich sind. Zudem wurden die Untersuchungen überwiegend mit Labor-*E. coli*-Stämmen und nicht mit abwasserbürtigen *E. coli*, die sich in ihren mikrobiologischen Eigenschaften/Reaktivierungsverhalten unterscheiden können, durchgeführt. Schon innerhalb von Labor-*E. coli*-Stämmen kann ein differenziertes Reaktivierungsverhalten auftreten. So reaktivieren sich die *E. coli*-Stämme ATCC 15597 und 11229 in Licht und Dunkelheit am schnellsten und im größten Ausmaß im Vergleich zu den pathogenen *E. coli*-Stämmen O157:H7, NCIMB 9481 und 10083 (Queck et al., 2008a). Demnach besteht weiterer Forschungsbedarf zu verschiedenen Einflussfaktoren auf das Ausmaß der bakteriellen Reaktivierung. Zudem bleibt die Frage, inwiefern die Reaktivierungsmechanismen unterbunden werden können, um eine sichere Anwendung und Lagerung als Brauchwasser zu gewährleisten, offen.

2.2.2. Elektrochemische Desinfektion

In den siebziger und achtziger Jahren des letzten Jahrhunderts beschrieben Reis und Kirmaier technische Anwendungen der elektrochemischen Desinfektion, die aber aufgrund langwieriger Probleme mit dem Elektrodenbetrieb wieder in den Hintergrund gerückt waren. Dennoch konnten diese Arbeiten nachweisen, dass durch Trinkwasserelektrolyse eine Vielzahl von Mikroorganismen abgetötet werden können (Reis, 1951, 1976; Kirmaier, et al., 1980, 1984). Erst in den letzten Jahren gelang es, die technischen Probleme durch Entwicklungsarbeiten an diesen Verfahren zu beseitigen. Generell beruht die Funktionsweise dieser Verfahren darauf, dass unter Einwirkung des elektrischen Stroms elektrochemische Vorgänge im Wasser ablaufen, wodurch einerseits aus den im Wasser enthaltenen Salzen Oxidations- bzw. Desinfektionsmittel auf Sauerstoff- und Chlorbasis gebildet werden. Andererseits kann das Wassermolekül selbst elektrolytisch gespalten werden. Daraus ergeben sich folgende Vorteile:

- *In-situ*-Erzeugung von Oxidationsmitteln, die ein Wirkdepot besitzen können,
- Vermeidung des externen Einsatzes von Chemikalien (keine Lagerung von Gefahrstoffen),
- hohe Desinfektionsleistung (Abtötung einer Vielzahl von Bakterien, Viren und Algen; Diao et al., 2003),
- geringer Platzbedarf der Anlagen sowie

- Möglichkeit der Automatisierung und *On-line*-Überwachung der Desinfektionsleistung.

Gegenwärtig stehen langzeitstabile und effektive Elektroden zur Verfügung, welche eine zufriedenstellende Wasserbehandlung über einen längeren Zeitraum gewährleisten könnten (Tenne et al., 1998; Fryda et al., 1999; Kraft et al., 1999a, b, c, 2000, 2003a, 2004; Haenni et al., 2001; Furuta et al., 2005; Panizza et al., 2005; Alfaro et al., 2006). Permanentanoden werden dabei in aktive und inaktive Elektroden eingeteilt. Dabei sind aktive Elektroden gute Elektrokatalysatoren, die Wasserinhaltsstoffe an ihrer Oberfläche adsorbieren und durch Elektronentransfer oxidieren oder reduzieren können. Sie zeigen daher nur eine geringe Überspannung bzgl. der Sauerstoffbildung. Hierzu zählen Elektroden aus Graphit sowie dimensionsstabile aktivierte Titanelektroden. Letztere sind entweder mit einer Platinschicht überzogen oder mit Iridiumoxid (IrO_2), mit Rutheniumoxid (RuO_2) oder mit einer Mischung dieser Oxide beschichtet. Elektroden mit Mischoxidbeschichtungen werden als Mischoxid-elektroden (MOX-Elektroden) bezeichnet. Inaktive Elektroden besitzen dagegen keine katalytisch aktiven Adsorptionsplätze für Ausgangsstoffe oder deren Produkte. Daher sind diese durch hohe Überspannungen für die Sauerstoff- und/oder Wasserstoffbildung gekennzeichnet. Hierzu zählen unter anderem Elektrodenmaterialien wie PbO_2 oder SnO_2 -basierte dimensionsstabile Anoden. In den letzten Jahren rückte eine neuartige dimensionsstabile, inaktive Elektrode, die bordotierte Diamantelektrode (BDD-Elektrode), in den Fokus des wissenschaftlichen Interesses. Auf den Markt sind dabei zwei verschiedene Arten von Diamantelektroden - die Dünnschicht-BDD-Elektroden und die Partikel-BDD-Elektroden - erhältlich (Abb. 2.2).

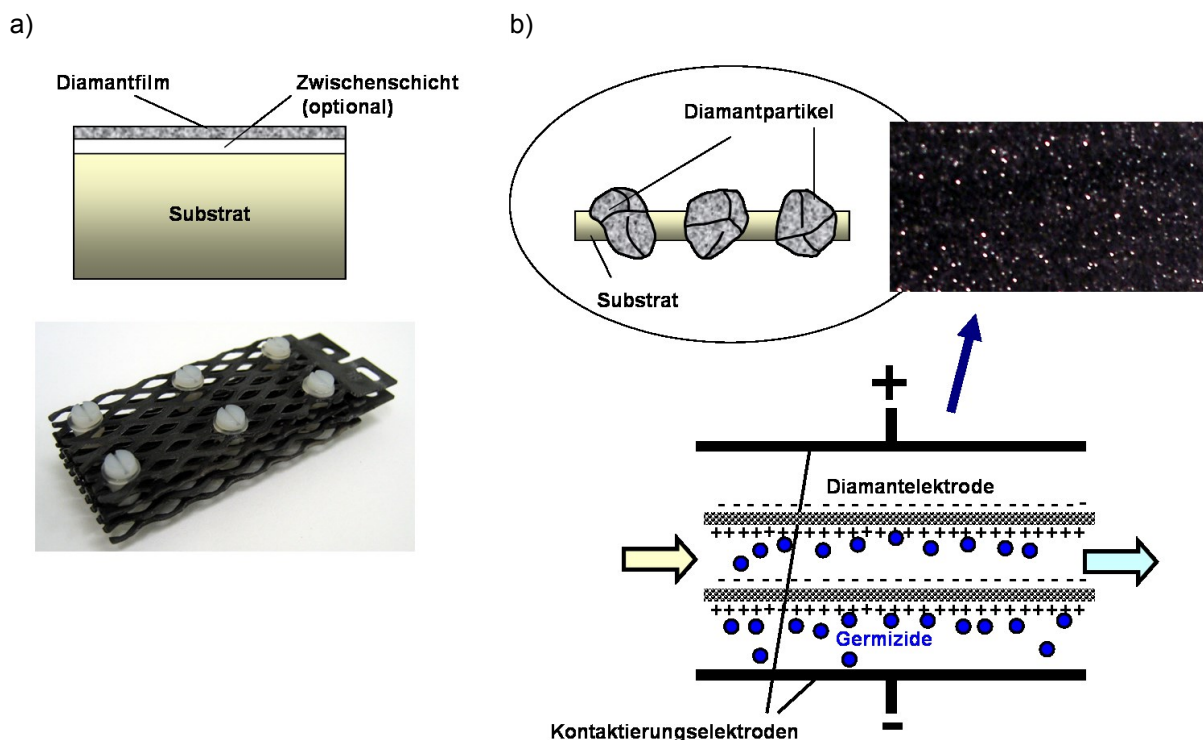


Abb. 2.2: Diamantelektrodentypen: a) Dünnschicht-BDD-Elektroden; b) Partikel-BDD-Elektroden

Wie aus der Bezeichnung hervorgeht, bestehen Dünnsfilm-BDD-Elektroden aus einer dünnen Diamantschicht, welche auf einem Metall- (z. B. Nb, Ta, Ti, W), Silizium- oder Keramiksubstrat durch chemische Gasphasenabscheidungsstechniken (CVD: Chemical Vapour Deposition) aufgebracht ist. So können Metallelektrodensubstrate mit einer 1...10 μm und siliziumbasierte Elektrodensubstrate mit einer 0,1...1,5 μm dicken Diamantschicht überzogen werden. Dagegen sind bei Partikel-BDD-Elektroden BDD-Partikel, die in einer Größe zwischen 100 μm und 200 μm durch Hochdruck-Hochtemperatur-Wachstumstechniken (HPHT) hergestellt werden, in eine nicht leitende Kunststoffmatrix eingebettet. Daher werden diese indirekt über Kontaktelektroden bipolar betrieben. Die Partikel-BDD-Elektroden versprechen eine höhere Langzeitstabilität als die Dünnsfilm-BDD-Elektroden. Die hohe Widerstandsfähigkeit gegenüber

- Korrosion und Verschleiß in sauren und stark oxidierenden Medien,
- Foulingprozessen,
- chemischen, elektrochemischen, mechanischen, thermischen Einflüssen und
- Zerstörung durch Strahlungsprozesse sowie oberflächenaktive Substanzen, wie z. B. Proteine,

stellt generell einen großen Vorteil von Diamantelektroden dar. Diese besitzen selbst bei hohen Stromdichten eine außerordentlich hohe Lebenszeit von drei bis vier Jahren (Debus, 2004). Weiterhin zeichnen sich Diamantelektroden durch die bisher größte bekannte Überspannung für die Sauerstoffentwicklung mit 2,7...2,9 V vs. SHE und für die Wasserstoffentwicklung mit -1,3...-1,5 V vs. SHE aus (Tröster et al., 2002). Damit wird das größte Potentialfenster von ca. 3 V im Vergleich zu anderen Elektrodenmaterialien, wie Platin oder MOX-Elektroden, erzeugt (Abb. 2.3).

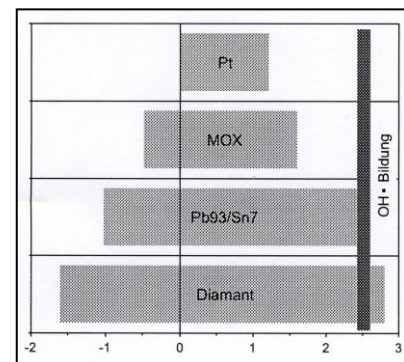


Abb. 2.3: Arbeitsbereiche verschiedener Elektrodenmaterialien bis zur Erzeugung von H₂ (links) und O₂ (rechts) (Debus, 2004)

Die Prozessführung kann auf zwei verschiedene Arten erfolgen. Beim *Ex-situ*-Betrieb werden Desinfektionsmittel in hohen Konzentrationen in einer separaten Elektrolysezelle erzeugt. Das auf diese Weise hergestellte Konzentrat wird anschließend dem zu behandelnden Wasser zudosiert. Beim *In-situ*-Betrieb wird das zu behandelnde Wasser direkt durch die Elektrolysezelle geleitet. Die Desinfektionsmittel werden somit unmittelbar im zu desinfizierenden Wasser elektrochemisch erzeugt. Hier kann auf eine Dosiertechnik verzichtet werden. Ferner werden Gefahren durch den Umgang mit konzentrierten Desinfektionsmitteln vermieden (Gao, 1998).

In Tabelle 2.4 sind elektrochemische Reaktionen, die zur Bildung verschiedener Desinfektionsmittel fñhren, mit den entsprechenden Standardpotentialen zusammengefasst. Dabei finden elektrochemische Vorgänge stets an der Phasengrenze zwischen Elektrode und Elektrolyt statt. Die Phasengrenze ist die Reaktionsschicht, die auch als elektrolytische Doppelschicht bezeichnet wird. Da am Reaktionsort zwei Phasen aufeinander treffen, spricht man von heterogenen Reaktionen (Schmidt, 2003). Abbildung 2.4 verdeutlicht schematisch die möglichen physikalisch-chemischen Vorgänge in der Reaktionsschicht vor der Anodenoberfläche (aktive Elektrode).

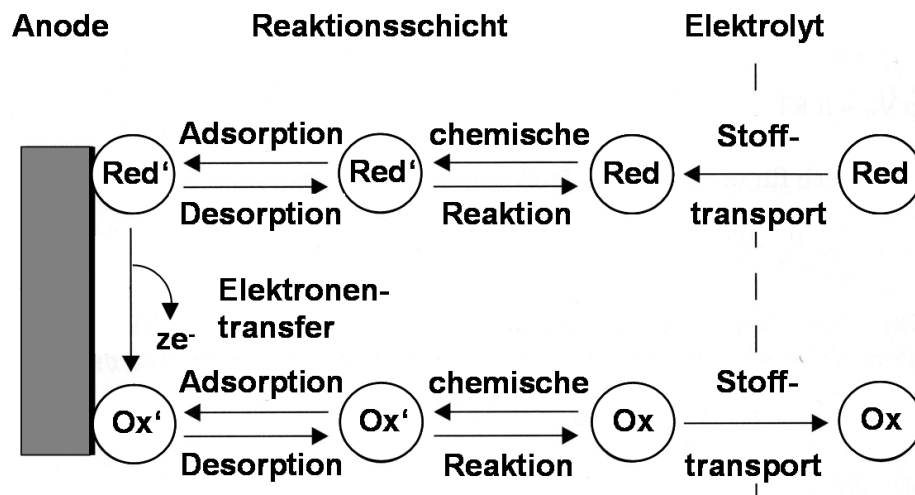


Abb. 2.4: Mögliche physikalisch-chemische Prozesse in der Reaktionsschicht vor der Elektrodenoberfläche (Red: Reduktionsmittel; Ox: Oxidationsmittel)

Tab. 2.4: Bildungsreaktionen und Standardpotentiale elektrochemisch erzeugter und desinfizierend wirkender Oxidationsmittel in wässriger Lösung

gebildetes Oxidationsmittel (Desinfizienz)	Bildungsreaktion des Oxidationsmittels	Standardpotential U^0 (vs. SHE ¹ , 298 K) in V
Chlor/Hypochlorige Säure/Hypochlorit	$2 \text{Cl}^-_{(\text{aq})} \rightleftharpoons \text{Cl}_{2(\text{g})} + 2\text{e}^-$	1,36
	$\text{Cl}_{2(\text{g})} + 2 \text{H}_2\text{O}_{(\text{l})} \rightleftharpoons 2 \text{HClO}_{(\text{aq})} + 2 \text{H}^+_{(\text{aq})} + 2 \text{e}^-$	1,63
	$\text{Cl}^-_{(\text{aq})} + \text{H}_2\text{O}_{(\text{l})} \rightleftharpoons \text{HClO}_{(\text{aq})} + \text{H}^+_{(\text{aq})} + 2 \text{e}^-$	1,50
	$\text{Cl}^-_{(\text{aq})} + 2 \text{OH}^-_{(\text{aq})} \rightleftharpoons \text{ClO}^-_{(\text{aq})} + \text{H}_2\text{O}_{(\text{l})} + 2 \text{e}^-$	0,89
Chlordioxid	$\text{Cl}^-_{(\text{aq})} + 2 \text{H}_2\text{O}_{(\text{l})} \rightleftharpoons \text{ClO}_{2(\text{aq})} + 4 \text{H}^+_{(\text{aq})} + 5 \text{e}^-$	1,51
Ozon	$3 \text{H}_2\text{O}_{(\text{l})} \rightleftharpoons \text{O}_{3(\text{g})} + 6 \text{H}^+_{(\text{aq})} + 6 \text{e}^-$	1,60
	$\text{O}_{2(\text{g})} + \text{H}_2\text{O}_{(\text{l})} \rightleftharpoons \text{O}_{3(\text{g})} + 2 \text{H}^+_{(\text{aq})} + 2 \text{e}^-$	2,07
Wasserstoffperoxid	$2 \text{H}_2\text{O}_{(\text{l})} \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}_{2(\text{aq})} + 2 \text{H}^+_{(\text{aq})} + 2 \text{e}^-$	1,78
Peroxodisulfat	$2 \text{SO}_4^{2-}{}_{(\text{aq})} \rightleftharpoons \text{S}_2\text{O}_8^{2-}{}_{(\text{aq})} + 2 \text{e}^-$	2,05
Hydroxylradikale	$\text{H}_2\text{O}_{(\text{l})} \rightleftharpoons \text{OH}^{\bullet}{}_{(\text{aq})} + \text{H}^+_{(\text{aq})} + \text{e}^-$	2,85

¹ SHE – Standardwasserstoffelektrode

Mittels sogenannter ct-Werte (Konzentration • Einwirkzeit) kann die Effektivität einzelner Desinfektionsmittel auf verschiedene Mikroorganismen abgeschätzt werden.

Dabei lässt sich folgende Rangfolge formulieren:

OH• > Ozon > freies Chlor > Wasserstoffperoxid > Peroxodisulfat

Sowohl an Diamantelektroden als auch an MOX-Elektroden wird dem freien Chlor, welches sich aus den drei Spezies Chlor (Cl_2), Hypochlorit (ClO^-) und hypochloriger Säure (HClO) zusammensetzt, die dominierende desinfizierende Wirkung zugeschrieben, wenn Chloridionen im Wasser zugegen sind (Kraft et al. 1999a, b, c; Palmas et al., 2007; Jeong et al., 2009; Schmalz et al., 2009). Dabei ist die germizide Wirkung der hypochlorigen Säure, deren Anteil unter sauren Bedingungen am größten ist ($\text{pK}_s = 7,5$), 80 mal höher als die des Hypochlorits (Nazaroff et al., 2001).

Der Desinfektionsmechanismus von freiem Chlor wird in verschiedenen Publikationen kontrovers diskutiert und ist nicht vollständig geklärt. Einige Autoren treffen die Aussage, dass die hypochlorige Säure durch die Zellmembran in das Zellinnere diffundiert, dort ihre oxidative Wirkung entfaltet und zum Zelltod führt (White, 1999; Bergmann et al., 2001). Bünning et al. (1996) dagegen behaupten, dass die Permeabilität durch die von Hypochloritionen verursachte oxidative Zerstörung der Zellmembranstruktur erhöht wird und infolge dessen diese Spezies schneller in die Zellen eindringen und andere Zellkomponenten oxidieren kann. Saby et al. (1997) stellten in diesem Zusammenhang eine zunehmende DAPI (4',6-Diamidino-2-phenylindol)-Diffusion durch die Zellmembran fest und bestätigten damit eine Erhöhung der Zellpermeabilität. Generell stellt freies Chlor ein sehr effektives Germizid gegenüber einer Vielzahl von enteritischen Bakterien dar, wobei ein Wirkdepot gewährleistet wird. Jedoch ist freies Chlor weniger wirksam gegenüber Viren, Sporen und Protozoen (Zysten und Oozysten) (Tyrell et al., 1995; Sobsey et al., 1998; Veschetti et al., 2003). Dabei ist die Chlorresistenz von einigen Viren um den Faktor 20...100 mal größer im Vergleich zur Chlorresistenz von Coliformen.

Der Mechanismus der elektrochemischen Erzeugung von freiem Chlor wird unter anderem vom Elektrodenmaterial bestimmt. An MOX-Elektroden (v. a. mit Ruthenium- oder Iridium/Ruthenium-Mischoxid-Beschichtungen) wird das freie Chlor vorwiegend durch direkte Oxidation der Chloridionen an der Elektrodenoberfläche erzeugt. Dagegen erfolgt die Bildung von freiem Chlor unter Einsatz der BDD-Elektroden vor allem durch die indirekte Oxidation der Chloridionen durch Hydroxylradikale (Jeong et al., 2009). Neben dem Elektrodenmaterial wurden weitere verfahrensspezifische Parameter, wie z. B. der Volumenstrom und die Stromdichte, von Kraft et al. (2003a) untersucht. Die Autoren stellten fest, dass die Bildung von freiem Chlor bei Volumenströmen bis zu 250 L h^{-1} zunächst zunimmt und bei höheren Werten wieder abnimmt. Sie erklärten, dass mit Erhöhung des Volumenstroms nicht nur der

Massentransferkoeffizient, sondern auch der Chlorverbrauch zunimmt und damit die gemessene Produktionsrate des freien Chlors abnimmt. Zudem beobachteten die Autoren eine direkte Proportionalität der Stromdichte (j) zur Bildungsrate des freien Chlors. Auch Khelifa et al. (2004) stellten eine nahezu lineare Erhöhung der Bildung des freien Chlors mit zunehmender Stromdichte ($j = 0 \dots 40 \text{ mA cm}^{-2}$) fest. Bergmann et al. (2005, 2010) beobachteten hingegen keinen linearen Zusammenhang bei der Chlorproduktion an MOX-Elektroden (Ti/IrO_2 und Ti/RuO_2), jedoch stieg auch hier die Chlorproduktion mit höheren Stromdichten an und erreichte ein Maximum zwischen 100 mA cm^{-2} und 200 mA cm^{-2} . Bei konstanter Kontaktzeit führt die Zunahme der Stromdichte zur Erhöhung des volumenspezifischen elektrischen Ladungseintrags (Q_v), wodurch die Bildung des freien Chlors steigt. Eine Erhöhung des volumenspezifischen elektrischen Ladungseintrags kann aber auch aus der Steigerung der Kontaktzeit (z. B. durch Verringerung des Volumenstromes in der kontinuierlichen Durchflusszelle oder durch eine längere Behandlung im Batch-Betrieb) bei konstanter Stromdichte resultieren. Die Erhöhung des Ladungseintrages fördert jedoch gleichzeitig die Bildung von unerwünschten Desinfektionsnebenprodukten. So stellten Palmas et al. (2007) bei der Elektrolyse einer chloridhaltigen Modellösung ($c_{\text{Chlorid}} = 100 \text{ mg L}^{-1}$) fest, dass freies Chlor mit zunehmendem Ladungseintrag fast vollständig in Perchlorat umgewandelt wird. Die Autoren schlussfolgerten, dass dies zu einer erheblichen Abnahme der Desinfektionsleistung beitragen kann. Auch Bergmann et al. (2002, 2010) beobachteten die Bildung von Chlorat und Perchlorat während der Elektrolyse von chloridhaltigen Modellösungen.

Weiterhin spielt die Chloridkonzentration bei der Bildung von freiem Chlor eine wichtige Rolle. Bergmann et al. (2005) und Kraft et al. (1999b, 2003a) zeigten, dass die Konzentration von freiem Chlor mit zunehmender Chloridkonzentration bei konstanter Stromdichte steigt. Zudem wird die Aussage getroffen, dass ein Minimum an Chloridionen in einem Konzentrationsbereich zwischen 10 mg L^{-1} und 20 mg L^{-1} Voraussetzung für die Bildung von freiem Chlor darstellt (Höll, 2002). Bergmann et al. (2005) geben dagegen eine minimale Chloridkonzentration von $7,5 \text{ mg L}^{-1}$ an.

Die Produktionsrate des freien Chlors wird zudem durch das sogenannte Elektroden-Scaling (Ablagerung von Wasserinhaltsstoffen), welches vor allem im Langzeitbetrieb der Elektroden auftritt, beeinflusst. Infolge der lokalen pH-Werterhöhung im Kathodenraum ($2 \text{ H}_2\text{O} + 2 \text{ e}^- \rightarrow \text{H}_2 + 2 \text{ OH}^-$) kommt es zum Auftreten von Calciumcarbonat- und Magnesiumhydroxidablagerungen, wenn Calcium-, Magnesium- und Hydrogencarbonationen in dem zu behandelnden Wasser zugegen sind. Dies führt zur Verringerung der Desinfektionsleistung. Durch die Anwendung der Polaritätsumkehr können zwar diese Ablagerungen entfernt werden, jedoch kann dies zudem zur drastischen Verringerung der Lebensdauer von MOX-Elektroden (bei IrO_2 -beschichteten Elektroden auf 3 Monate) führen (Kraft et al., 1999c, 2003a). Thürigen (2012) und Wendt (2013) wiesen nach, dass die Lebensdauer der MOX-Elektroden unter

anderem vom elektrischen Ladungseintrag und vom Umpolintervall beeinflusst wird. So beobachtete Thürigen (2012), dass sich die Betriebsstunden von Ti/IrO₂-RuO₂-TiO₂-Mischoxid-elektroden, deren Polung mit einem um den Faktor 4 geringeren Umpolintervall wechselte, um ein Drittel verringerten. Dies war vor allem auf eine Schädigung der Beschichtung zurückzuführen. Mittels Rasterelektronenmikroskopie ließ sich vor und nach dem Dauerversuch feststellen, dass sich die katalytisch aktiven Bestandteile der Beschichtung ablösten. Zudem wurde die Lebensdauer der MOX-Elektroden von der Qualität, der Zusammensetzung und der Dicke der Mischoxidbeschichtung beeinflusst. Wendt (2013) beobachtete weiterhin eine Erhöhung des elektrischen Gesamtladungseintrags um mindestens ein Drittel bei einer Verringerung der Stromdichte auf 20 mA cm⁻² sowie das Einhalten einer Pause von 30 s zwischen der Umpolung. Generell konnten beide Autoren die Betriebsstunden der Mischoxid-elektroden durch Erhöhung des Umpolintervalls und Verringerung des Ladungseintrags steigern. So ergeben sich bei einem Umpolintervall von 60 Minuten und einem flächenspezifischen Gesamtladungseintrag (Q_A) von 40 Ah cm⁻² ($j = 20 \text{ mA cm}^{-2}$) 4000 Betriebsstunden für Ti/RuO₂-IrO₂-TiO₂-Mischoxidelektroden. Jedoch zeigten sich auch höhere Umpolintervalle von 8 h als ausreichend (Wendt, 2013). Generell wiesen Dünnschicht-BDD-Elektroden dagegen keine Verkürzung der Lebensdauer durch Umpolung auf (Thürigen, 2012).

Dass außer dem Vorhandensein von freiem Chlor noch andere Spezies an der Desinfektion beteiligt sein müssen, konnten unter anderem Li et al. (2004a, b), Son et al. (2004), oder auch Furuta et al. (2004) zeigen. Die Bildung reaktiver Sauerstoffspezies (ROS), wie OH[•], H₂O₂, O₃ sowie [•]O₂⁻, ist dabei nur an inaktiven Elektroden mit hoher Sauerstoffüberspannung möglich. An BDD-Elektroden können demnach chlorfreie Oxidationsmittel bzw. Desinfektionsmittel erzeugt werden. Da OH-Radikale mit einer Stromausbeute von nahezu 100 % generiert werden können, wird der Prozess auch als *Electrochemical Advanced Oxidation Process* (EAOP) bezeichnet (Marselli et al., 2003). Hierbei sei erwähnt, dass OH-Radikale mit einem elektrochemischen Oxidationspotential von 2,85 V die stärksten Oxidationsmittel darstellen und daher die größte Desinfektionswirkung aufweisen, was unter anderem Li et al. (2004a) anhand morphologischer Untersuchungen von *E. coli* Zellen bestätigten. Die Rolle der ROS bei der elektrochemischen Desinfektion ist jedoch gegenwärtig nur unzureichend erforscht. Daher stellten sich Jeong et al. (2006) die elektrochemische Inaktivierung von *E. coli*-Bakterien in einem chloridfreiem Phosphatpuffer zur Aufgabe. Dabei konnten die Autoren nachweisen, dass die Dauer des elektrochemischen Desinfektionsprozesses an einer BDD/Nb-Anode (bortotierter Diamant auf Niob Substrat) mit zunehmender Stromdichte deutlich verkürzt wird, ohne dass freies Chlor gebildet wird. Die Autoren zeigten, dass OH-Radikale die Hauptrolle bei der Inaktivierung von *E. coli* in chloridfreiem Wasser spielen. Auch morphologische Untersuchungen der Zellen deuteten auf die Einwirkung sehr starker Oxidantien, wie OH-Radikale, hin, da eine Zelllyse beobachtet wurde. Weiterhin können die

Desinfizienzen Peroxodisulfat und Peroxodicarbonat aus Sulfat- bzw. Carbonationen durch die Oxidation mit OH-Radikalen elektrochemisch erzeugt werden (Panizza et al., 2005).

2.2.3 Verfahrenskombinationen

Da auer den in dieser Dissertation durchgefhrten Untersuchungen keine weiteren Forschungsstudien zur UV/Elektrolyse-Hybridtechnik existieren, wurden die Ergebnisse der Literaturrecherche zur kombinierten Anwendung der UV-Bestrahlung und der manuellen Zugabe von chemischen Oxidantien, die prinzipiell auch bei der elektrochemischen Desinfektion erzeugt werden knnen (Kapitel 2.2.2), in diesem Kapitel zusammengefasst.

Die kombinierte Anwendung von **UV-Bestrahlung und freiem Chlor** wurde zur Desinfektion von Trinkwasser vielfach untersucht, jedoch sind Studien im Abwasserbereich (erhhte DOC- und TSS-Konzentrationen) rar. So stellten Wang et al. (2012) unter anderem eine vollstndige Reduktion heterotropher Bakterien in biologisch gereinigtem Abwasser mit einer Trbung von 0,2 NTU ($\text{DOC} = 5,2 \text{ mg L}^{-1}$) bei einer UV-Bestrahlungsdosis von 200 J m^{-2} fest. Bei der singulren Anwendung der Chlorung wurde eine vollstndige Keimzahlreduktion bei einer Ausgangskonzentration an freiem Chlor von $> 5,5 \text{ mg L}^{-1}$ und einer Kontaktzeit von 30 min beobachtet. Bei dem kombinierten Einsatz beider Verfahren konnte dagegen die UV-Bestrahlungsdosis auf 150 J m^{-2} und die Ausgangskonzentration an freiem Chlor auf $1,6 \text{ mg L}^{-1}$ ($t = 30 \text{ min}$) reduziert werden, um eine vollstndige Reduzierung heterotropher Bakterien zu erzielen. Dies fhrte zustzlich zur verringerten Bildung von Trihalomethanen. So konnte die THM-Konzentration von $> 27,2 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ auf $19,7 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ gesenkt werden. Weiterhin wurde die Photoreaktivierung bei einer UV-Bestrahlungsstrke von 400 J m^{-2} und einer Ausgangskonzentration an freiem Chlor von $2,0 \text{ mg L}^{-1}$ vollstndig unterbunden. Die Reduzierung der freien Chlorkonzentration innerhalb des Hybridverfahrens konnte jedoch nicht fr Abwasser mit einem DOC-Gehalt von $9,9 \text{ mg L}^{-1}$ erzielt werden, so dass schon moderate DOC-Werte dieses Hybridverfahren limitieren. Die Autoren fhren dies auf die hhere Chlorzehrung zurck. Die kombinierte Anwendung von UV-Bestrahlung und freiem Chlor kann zudem zu einer besseren Kontrolle der Biofilmbildung beitragen (Murphy et al., 2008). Im Gegensatz zu diesen Forschungsergebnissen beobachteten Cho et al. (2006, 2011) keinen synergistischen Effekt bei der UV-Bestrahlung ($H = 100 \dots 600 \text{ J m}^{-2}$) einer mit MS2-Phagen und *B. subtilis*-Sporen versetzten phosphatgepufferten Natriumchloridlsung und anschlieender Zugabe von freiem Chlor in einem Konzentrationsbereich von $0,1 \dots 3 \text{ mg L}^{-1}$. Die Desinfektionsleistung sowie die Desinfektionskinetik der Chlorung war mit der der UV/Chlorung vergleichbar. Jedoch verringerte sich der ct-Wert fr eine Reduktion der MS2-Phagen von 2 log-Stufen um 32 % bei der kombinierten Anwendung von UV/Wasserstoffperoxid und anschlieender Chlorung. Insgesamt wurde die log-Reduktion der MS2-Phagen um 75 % und der *B. subtilis*-Sporen um 65 % durch den synergistischen Effekt erhht. Dieser wurde

auf die Zerstörung der Zellmembran und/oder der Zellwand durch die OH-Radikale, die im primären UV/Wasserstoffperoxid-Verfahren gebildet wurden und die dadurch verbesserte Diffusion von freiem Chlor, welches im zweiten Schritt zugegeben wurde, zurückgeführt. Auch Montemayor et al. (2008) stellten fest, dass die UV-Bestrahlung von biologisch gereinigtem Abwasser ($H = 250 \text{ J m}^{-2}$) mit anschließender Chlorung ($C_{\text{freies Chlor}} = 5 \text{ mg L}^{-1}$) keine Erhöhung der Reduktion von nicht sporenbildenden Bakterien, wie unter anderem *E. coli* und fäkale Enterokokken, im Vergleich zur Chlorung (ca. 4 log-Stufen) erzielte. Somatische Coliphagen konnten jedoch um insgesamt 3 log-Stufen reduziert werden. Diese Desinfektionsleistung war um annähernd 1,5 log-Stufen höher als die der Chlorung und um annähernd eine log-Stufe höher als die der UV-Bestrahlung. Um ein breites Spektrum an Mikroorganismen (Bakterien, Viren, Oocysten usw.) in biologisch gereinigtem Abwasser abzutöten, empfehlen die Autoren eine UV-Bestrahlungsdosis von 800 J m^{-2} und eine freie Chlorkonzentration von 1 mg L^{-1} . Das auf diese Weise desinfizierte Abwasser erfüllt die mikrobiologischen Qualitätsanforderungen von Brauchwasser für innerstädtische Anwendungen (keine Trinkwasserqualität) sowie von Bewässerungswasser (Landwirtschaft und Gärten). Shang et al. (2007) wiesen bei einer UV-Bestrahlungsdosis von 510 J m^{-2} und einer freien Chlorkonzentration von 1 mg L^{-1} eine Erhöhung der Inaktivierungsrate von MS2-Phagen um den Faktor 1,5...2,7 nach. Bei der Zugabe von **Monochloramin** ($C_{\text{Monochloramin}} = 7 \text{ mg L}^{-1}$) als sekundäres Desinfektionsmittel wurde eine 4...5-fache Erhöhung der Inaktivierungsrate beobachtet.

Ballester et al. (2004) stellten unter anderem einen synergistischen (interaktiven) Effekt bei der UV-Bestrahlung ($H = 400 \text{ J m}^{-2}$) und anschließender Desinfektion von mit Adenoviren (Typ 2) verunreinigtem Wasser mittels Chloraminen ($ct = 27,2 \text{ mg min L}^{-1}$) fest. So wurde eine Desinfektionsleistung von 4 log-Stufen erzielt. Im Gegensatz dazu betrug die Desinfektionsleistung der UV-Bestrahlung und der Zugabe von Chloraminen als Einzelverfahren jeweils annähernd eine log-Stufe. Auch Durance et al. (2005) wiesen eine Reduktion von Adenoviren (in Trinkwasser) um 4 log-Stufen mittels kombinierter Anwendung der UV-Bestrahlung ($H = 400 \text{ J m}^{-2}$) und Chlorung mittels freiem Chlor nach. Die UV-Bestrahlung als Einzelverfahren führte dagegen lediglich zu einer Reduktion der Adenoviren um eine log-Stufe.

Die Kombination von UV-Bestrahlung mit weiteren chemischen Oxidantien lässt sich den *Advanced Oxidation Processes* (AOPs) zuordnen. Generell werden AOP-Verfahren vor allem zur Oxidation von biologisch schwer abbaubaren (Spuren)Stoffen (Pestizide, Arzneimittel, hormonähnliche Substanzen usw.) in Wässern eingesetzt, da die in den Prozessen erzeugten OH-Radikale als stärkste Oxidationsmittel in der Wasseraufbereitung bekannt sind. Letzteres führte zudem dazu, dass in den letzten Jahren deren Einsatz zur Desinfektion von Abwasser vereinzelt untersucht wurde (Rajala-Mustonen et al., 1997; Lubello et al., 2002; Caretti et al., 2003). Dabei wurden unter anderem Studien zur Kombination von **UV-**

Bestrahlung und Ozon oder **Wasserstoffperoxid** durchgeföhrt. Die germizide Wirkung der OH-Radikale beruht vor allem auf die Inaktivierung von Enzymen, Zerstörung intrazellulärer Komponenten und der Zellwand/Zellmembran, was unter anderem zum Verlust von internen Zellbestandteilen und damit zur Zelllysis föhrt. Zudem können Enzyme inaktiviert und Zellkomponenten zerstört werden, wodurch der Verlust der Vermehrungsfähigkeit der Mikroorganismen resultiert (Montgomery, 1985).

Cho et al. (2011) stellten eine Erhöhung der Desinfektionsleistung bei dem kombinierten Einsatz von Wasserstoffperoxid und UV-Bestrahlung im Vergleich zur UV-Bestrahlung einer Modelllösung ohne Wasserstoffperoxid (10 mmol L^{-1} phosphatgepufferte Natriumchloridlösung) fest. Diese kombinierte Anwendung ($\text{UV}/c_{\text{Wasserstoffperoxid}} = 0,6 \text{ mmol L}^{-1}$) föhrte zudem dazu, dass sich die erforderliche UV-Bestrahlungsdosis für eine Reduktion von MS2-Phagen um 3 log-Stufen von 570 J m^{-2} auf 320 J m^{-2} im Vergleich zur UV-Bestrahlung ohne Wasserstoffperoxid verringerte. Die UV-Bestrahlungsdosis zur Reduktion von *B. subtilis*-Sporen reduzierte sich dagegen um 70 J m^{-2} (von 280 J m^{-2} auf 210 J m^{-2}). Zudem stellten die Autoren fest, dass die Erhöhung des ct-Wertes der erzeugten OH-Radikale um den Faktor 6 (durch sechsfache Erhöhung der Konzentration der Wasserstoffperoxidlösung) zur Erhöhung der Reduktion der MS2-Phagen um den Faktor 4 (von 0,4 auf 1,6 log-Stufen) föhrte. Auch Mamane et al. (2007) beobachteten eine um 2,5 log-Stufen höhere Reduktion von MS2-Phagen bei dem kombinierten Einsatz von Wasserstoffperoxid ($c_{\text{Wasserstoffperoxid}} = 25 \text{ mg L}^{-1}$) und UV-Bestrahlung ($H = 7.020 \text{ J m}^{-2}$) als bei der UV-Bestrahlung als Einzelverfahren. Koivunen et al. (2005) sowie Lubello et al. (2002) beobachteten dagegen, dass die kombinierte Behandlung einer mikrobiologisch belasteten Modelllösung (Pepton in dest. Wasser: $0,15 \text{ g L}^{-1}$) mit Wasserstoffperoxid ($3 \dots 150 \text{ mg L}^{-1}$) und UV-Bestrahlung ($H = 100 \dots 1200 \text{ J m}^{-2}$) keine signifikante Erhöhung der Desinfektionsleistung (*E. faecalis*, MS2 Coliphagen, Gesamtcoliforme, Fäkalcoliforme, *E. coli*) im Vergleich zur singulären Anwendung der UV-Bestrahlung bewirkte. Koivunen (2005) vermutete, dass dies mit einem schwachen OH-Radikalbildungspotential einhergeht. Quantitative spektroskopische Analysen zur Produktion von OH-Radialen von Bianchini et al. (2002) bestätigten dies. Es sei zudem erwähnt, dass Wasserstoffperoxid selten als alleiniges Desinfektionsmittel aufgrund der marginalen Desinfektionswirkung eingesetzt wird (Liberti et al., 2000; Wagner et al., 2002; Lubello et al., 2002; Mamane et al., 2007; Cho et al., 2011).

Weiterhin wurde die Kombination von Ozon und UV-Bestrahlung zur Desinfektion von Trinkwasser und Prozesswasser untersucht. So beobachteten Sharrer et al. (2007) eine Reduktion von Gesamtcoliformen in Prozesswasser um annähernd 2 log-Stufen bei alleiniger Anwendung der Ozonung ($\text{ct} = 0,1 \dots 0,2 \text{ mg min L}^{-1}$). Durch die darauf folgende UV-Bestrahlung ($H = 861 \dots 911 \text{ J m}^{-2}$) konnte eine fast vollständige Desinfektion ($3 \dots 4$ log-Stufen) erzielt werden. Jung Jung et al. (2008) wiesen eine Reduktion von *Bacillus subtilis*-Sporen um

4 log-Stufen (in phosphatgepufferter Lösung) bei der kombinierten Anwendung von Ozon ($ct = 4 \text{ mg min L}^{-1}$)/UV-Bestrahlung ($H = 200 \text{ J m}^{-2}$) im Vergleich zum Einsatz als Einzelverfahren, bei denen lediglich eine Reduktionsleistung von jeweils einer log-Stufe erzielt wurde, nach. Die Erhöhung der Desinfektionsleistung geht dabei sowohl auf die germizide Wirkung des Ozons als auch der erzeugten OH-Radikale zurück. Der Anteil der OH-Radikale an der Gesamtreaktion der *Bacillus subtilis*-Sporen betrug dabei 33 % (0,8 log-Stufen).

Insgesamt lässt sich feststellen, dass die interaktive bzw. additive Wirkung der kombinierten Anwendung von UV-Verfahren und Zugabe von chemischen Oxidantien unter anderem zur Reduzierung der Konzentration des Desinfektionsmittels (Bestrahlungsdosis), der Kontaktzeit und der Bildung von Desinfektionsnebenprodukten im Vergleich zur Anwendung als Einzelverfahren beitragen kann. Jedoch sind UV-Verfahrenskombinationen bisher marginal in Bezug auf die Unterbindung unerwünschter Reaktivierungsmechanismen von bakteriellen Pathogenen untersucht worden, so dass hier weiterer Forschungsbedarf besteht.

2.2.4. Forschungspotential zu elektrochemischen Desinfektionsverfahren und UV/Elektrolyse-Hybridverfahren im Rahmen der dezentralen Gewinnung von Brauchwasser

Die Untersuchung alternativer Desinfektionsverfahren zur Abwasserrückgewinnung und -wiederverwendung nimmt eine bedeutende Rolle innerhalb eines nachhaltigen Wasserressourcenmanagements ein. Die WERF (2008) weist unter anderem darauf hin, dass jedoch noch viele Fragen zu verschiedenen Schlüsselfaktoren, wie z. B. der Einfluss wasserspezifischer Parameter (pH, Temperatur, Partikel, gelöste organische Stoffe usw.), die Bildung von Desinfektionsnebenprodukten, die Kosten usw. offen sind. Eine umfangreiche Forschung zu dieser Thematik trägt entscheidend dazu bei, neuartige Desinfektionsverfahren zur Abwasserrückgewinnung und -wiederverwendung besser vergleichen, bewerten und einordnen zu können.

Untersuchungen zur **elektrochemischen Desinfektion** wurden bisher überwiegend mit Modelllösungen durchgeführt (Kap. 2.2.2). In der Praxis spielen diese Verfahren eine zunehmend wichtige Rolle innerhalb der Desinfektion von Wässern mit niedrigen DOC-Konzentrationen ($\text{DOC} \leq 3 \text{ mg L}^{-1}$: Trinkwasser, Schwimmbeckenwasser, Ballastwasser) und/oder sehr hohen Chloridkonzentrationen im g L^{-1} -Bereich (Schwimmbeckenwasser, Ballastwasser) (Kraft, 2003b; Kraft et al., 2006; Furuta et al., 2004; Feng et al., 2004). Untersuchungen zur Anwendbarkeit der elektrochemischen Desinfektion innerhalb des dezentralen Abwasserbereichs sind neu. Studien zu dieser Thematik sind daher rar. Ilian (2010) konnte zwar die prinzipielle Eignung der elektrochemischen Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser ($c_{\text{chlorid, mittel}} = 126 \text{ mg L}^{-1}$; $\text{DOC}_{\text{mittel}} = 22 \text{ mg L}^{-1}$) mittels Dünnfilm-BDD-Elektroden zeigen und eine sichere Desinfektion bei einer hohen bzw. stabilen Reinigungsleistung der Kläranlage nachweisen, jedoch wurde der Einfluss verschiedener relevanter abwasserspezi-

fischer Parameter, wie DOC-Gehalt, pH-Wert und Temperatur, die bei Kleinkläranlagenabläufen stark schwanken können, nicht oder nur unzureichend geklärt. Dies ist jedoch für die Bewertung der Desinfektionsleistung bzw. Desinfektionsnebenproduktbildung und somit für die allgemeine Praxistauglichkeit/Anwendbarkeit der elektrochemischen Desinfektion von großer Bedeutung. Generell ist der derzeitige Kenntnisstand hierzu unzureichend. Daher sind Untersuchungen zu dieser Thematik erforderlich. Ilian (2010) weist zudem darauf hin, dass auch alternative Elektrodenmaterialien (MOX-Elektroden, Partikel-BDD-Elektroden) untersucht werden sollten.

Die **UV-Desinfektion** stellt prinzipiell ein effizientes Desinfektionsverfahren bei geringen Investitions- und Betriebskosten dar. Jedoch wird eine hohe Desinfektionsleistung bei moderaten UV-Bestrahlungsdosen nur dann erzielt, wenn das Abwasser eine TSS-Konzentration von $< 20 \text{ mg L}^{-1}$ bzw. eine Transmission von $> 55 \%$ aufweist (ATV-Handbuch, 1997; Popp, 1999). In der Praxis kann die Konzentration der abfiltrierbaren Stoffe bis zu 75 mg L^{-1} betragen (Ilian, 2007). Der Einsatz einer Filtration vor der UV-Bestrahlung ist jedoch generell mit großem Wartungsaufwand und somit hohen Betriebskosten verbunden. Daher wird dies im Einzelfall oft abgewägt. Jedoch können schwankende abwasserspezifische Parameter (TSS-Konzentration, Trübung, Transmission) sowie Beläge (Biofouling, Scaling) auf den Quarzglasröhren der UV-Strahler zu einer Verringerung der letalen UV-Bestrahlungsdosis auf eine subletale UV-Bestrahlungsdosis führen und somit die unerwünschte bakterielle Reaktivierung im Abwasser begünstigen (Kap. 2.2.1.2). Dabei sind verschiedene Einflussfaktoren auf die Reaktivierungsprozesse von Bakterien in biologisch gereinigtem Abwasser bis heute nur unzureichend untersucht. Zudem stellt sich die Frage, inwiefern die Reaktivierungsprozesse unterbunden werden können, um eine sichere Wiederverwendung des UV-behandelten Abwassers zu gewährleisten. Die Zugabe von chemischen Oxidantien mit hohem Oxidationspotential nach der UV-Desinfektion könnte zwar prinzipiell eine irreversible Schädigung der Bakterien hervorrufen, jedoch erfordert der externe Einsatz von Chemikalien häufig aufwendige, sicherheitsrelevante Maßnahmen (Lagerung, Umgang mit toxischen, teilweise explosiven Chemikalien) und ist nur mit entsprechendem Fachwissen bzw. Fachpersonal möglich. Eine Alternative hierzu könnte die UV/Elektrolyse-Hybridtechnik darstellen, da Oxidantien direkt (*in-situ*) aus dem UV-behandelten Abwasser elektrolytisch erzeugt werden können (Kap. 2.2.2). Zudem besteht die Möglichkeit, ein Wirkdepot bereitzustellen. Weiterhin setzen insbesondere Scaling- und Biofoulingprozesse die Lebensdauer der Strahler herab. Der Einsatz und die Entsorgung ätzender und gesundheitsschädlicher Chemikalien zur Säuberung der Strahler stellen weitere Nachteile dar. Durch synergistische Nutzung der **UV/Elektrolyse-Hybridtechnik** könnte die unerwünschte Reaktivierung von reversibel UV-geschädigten Pathogenen durch elektrolytisch generierte Germizide vollständig unterbunden und so eine sichere Verwendung und ausreichende Lagerfähigkeit des Brauchwassers ge-

währleistet werden. Zudem könnte sich der Einsatz dieser Verfahrenskombination als vorteilhaft aufgrund des Potentials zur

- Erhöhung der Betriebszeit der UV-Strahler durch Verringerung der Belagbildung (Biofouling) auf den Quarzglasrüllrohren der UV-Strahler,
- verringerten Bildung von unerwünschten Desinfektionsnebenprodukten durch Senkung der Konzentration an Desinfektionsmitteln und Einwirkzeiten sowie
- flexiblen Einsatzfähigkeit und Anpassungsfähigkeit

erweisen. Die generelle Herausforderung an **kombinierte Verfahren** ist, diese trotz komplexer und hoher Anforderungen an eine effiziente und zuverlässige Desinfektionsleistung bei geringer bzw. moderater Bildung von unerwünschten Desinfektionsnebenprodukten, zudem technisch einfach, flexibel anwendbar, skalierbar und ökonomisch zu realisieren. Die kombinierte Anwendung von UV- und elektrochemischer Desinfektion von Wässern wird zwar immer wieder von einigen Forschern, wie unter anderem von Bergmann et. al. (2002), vorgeschlagen, jedoch wurden bisher keine umfangreichen Untersuchungen auf diesem Gebiet durchgeführt. Aus dem dargelegten großen Potential, jedoch unzureichenden bzw. fehlenden Forschungsstudien zur Anwendung der elektrochemischen Desinfektion sowie der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik zur Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser mit dem Ziel der Gewinnung von Brauchwasser ergab sich die Notwendigkeit, diese detailliert in der vorliegenden Dissertation zu untersuchen.

2.3 Literatur

Alfaro, M. A. Q., Ferro, S., Martinez-Huitle, C. A., Vong, Y. M. (2006)

Boron-doped diamond electrode for the wastewater treatment, *J. Braz. Chem. Soc.* **17**, 227-236

Amoah, K., Craik, S., Smith, D. W., Belosevic, M. (2005)

Inactivation of *Cryptosporidium* oocysts and *Giardia* cysts by ultraviolet light in presence of natural particulate matter, *J. Water Supply Res. Technol.-AQUA* **54**, 165-178

Amtsblatt der Europäischen Union (2006)

Richtlinie 2006/7/EG des Europäischen Parlaments und des Rates (2006) über die Qualität der Badegewässer und deren Bewirtschaftung und zur Aufhebung der Richtlinie 76/160/EWG

Asano, T., Levine, A. D. (1996)

Wastewater reclamation, recycling and reuse: Past, present, and future, *Water Sci. Technol.* **33**, 1-14

Asano, T. (1998)

Wastewater reclamation and reuse, Water Quality Management Library, 10, CRC Press, Boca Raton, FL.

Asano T. (2002)

Water from (waste)water - the dependable water recourse, *Water Sci. Technol.* **45**, 24-33

Asano, T., Burton, F. L., Leverenz, H. L., Tsuchihashi, R., Tchobanoglous, G. (2007)

Water reuse - Issues, technologies and applications, Mc Graw Hill, Metcalf & Eddy, Aecom Press

ATV-Handbuch (1997)

Biologische und weitergehende Abwasserreinigung, Ernst & Sohn-Verlag

Australian Guidelines for Water Recycling: Managing health and environmental risks (phase 1) (2006)

National guidelines for water recycling: Managing health and environmental risks

Ballester, N., Malley, J. P. (2004)

Sequential disinfection of adenovirus type 2 with UV-chlorine-chloramine, *J. AWWA* **96**, 97-103

Baron, J., Bourbrigot, M. M. (1996)

Repair of *Escherichia coli* in sea water after ultraviolet disinfection quantification using diffusion chambers, *Water Res.* **30**, 2817-2821

Baron, J. S., Poff, N. L., Angermeier, P. L., Dahm, C. N., Gleick, P. H., Hairston, N. G., Jackson, R. B., Johnston, C. A., Richter, B. D., Steinman, A. D. (2002)

Meeting ecological and social needs for freshwater, *Ecol. Appl.* **12**, 1247-1260

Beggs, C. B. (2002)

A quantitative method for evaluating the photoreactivation of ultraviolet damaged microorganisms, *Photochem. Photobiol. Sci.* **1**, 431-437

Belosevic, M., Craik, S. A., Stafford, J. L., Norman, N. F., Kruithof, J. C., Smith, D. (2001)

Studies on the resistance/reactivation of *Giardia muris* cysts and *Cryptosporidium parvum* oocysts exposed to medium-pressure ultraviolet radiation, *FEMS Microbiol. Lett.* **204**, 197-203

Beltran, N. A., Jimenez, B. E. (2008)

Faecal coliforms, faecal enterococci, *Salmonella* Typhi and *Acanthamoeba* spp. UV inactivation in three biological effluents, *Water SA* **34**, 261-269

Bergmann, H., Iourtchouk, T., Schöps, K., Ehrig, F. (2001)

Was ist und was kann die sogenannte Anodische Oxidation?, *GWF Wasser Abwasser* **142**, 857-869

Bergmann, H., Iourtchouk, T., Schöps, K. & Bouzek, K. (2002)

New UV irradiation and direct electrolysis – promising methods for water disinfection, *Chem. Eng. J.* **85**, 111-117

Bergmann, H., Koparal, A. S. (2005)

Studies on electrochemical disinfectant production using anodes containing RuO₂, *J. Appl. Electrochem.* **35**, 1321-1329

Bergmann, M. E. H. (2010)

Drinking water disinfection by in-line-Electrolysis: Product and inorganic by-Product formation, In: *Electrochemistry for the Environment*, Springer-Verlag, pp. 163-203

Berliner Senatsverwaltung für Stadtentwicklung (2007)

Innovative Wasserkonzepte, Betriebswassernutzung in Gebäuden, 1-30

Bernhard, H. (1994)

Desinfektion aufbereiteter Oberflächenwässer mit UV-Strahlen, Konsequenzen für die Wasserversorgung aus den Ergebnissen des F- und E-Verbundvorhabens, *GWF Wasser-Abwasser* **135**, 677-689

Bianchini, R., Calcucci, L., Lubello, C., Pinzino, C. (2002)

Intermediate free radicals in the oxidation of wastewaters, *Res. Chem. Intermed.* **28**, 247-256

Bixio, D., De heyder, B., Cikurel, H., Muston, M., Miska, V., Joksimovic, D., Schäfer, A. I., Ravazzini, A., Aharoni, A., Savic, D., Thoeys, C. (2005)

Municipal wastewater reclamation: where do we stand? An overview of treatment technology and management practice, *Water Sci. Technol.: Water Supply* **5**, 77-85

Bohrerova, Z., Mamane, H., Ducoste, J. J., Linden, K. G. (2006)

Comparative inactivation of *Bacillus subtilis* spores and MS-2 coliphage in a UV reactor: Implications for validation, *J. Environ. Eng.-ASCE* **132**, 1554-1561

Bohrerova, Z., Shemer, H., Lantis, R., Impellitteri, C. A., Linden, K. G. (2008)

Comparative disinfection efficiency of pulsed and continuous-wave UV irradiation technologies, *Water Res.* **42**, 2975-2982

Bontoux, L. (2000)

Municipal wastewater: public health and the environment, <http://www.ub.edu/medame/resi-mun.html>

Bourrouet, A., Garcia, J., Mujeriego, R., Penuelas, G. (2001)

Faecal bacteria and bacteriophage inactivation in a full-scale UV disinfection system used for wastewater reclamation, *Water Sci. Technol.* **43**, 187-194

Braden, J. B., van Ierland, E. C. (1999)

Balancing: The economic approach to sustainable water management, *Water Sci. Technol.*, **39**, 17-23

Brechner, E., Dreesmann, D., Dinkelaker, B. (2001)

Kompaktlexikon der Biologie, Spektrum Akademischer Verlag

Buderer, M. (1994)

Abwasserdesinfektion mittels UV-Bestrahlung und Ozonetrug und die Auswirkung einer vorgeschalteten Sandfiltration, Dissertation, Justus-Liebig-Universität Gießen

Bünning, G., Hempel, D. C. (1996)

Vital-fluorochromatization of microorganisms using 3', 6'-diacetylfluorescein to determine damages of cell membranes and loss of metabolic activity by ozonation, *Ozone Science and Engineering* **18**, 173-181

Cairns, W. L. (1993)

Comparing disinfection by UV light and chlorination - The implications of mechanisms for practice, planning, design and operations of effluent disinfection systems, Specialty Conference, Whippany, N. J.

California Code Regulations (2000)

Title 22, Divisions 4, Chapter 3: Water recycling criteria, sections 60301 et seq.

Caretti, C., Lubello, C. (2003)

Wastewater disinfection with PAA and UV combined treatment: a pilot plant study, *Water Res.* **37**, 2365-2371

Carter, M. J. (2005)

Enterically infecting viruses: Pathogenicity, transmission and significance for food and waterborne infection, *J. Appl. Microbiol.* **98**, 1354-1380

Chan, Y. Y., Killick, E. G. (1995)

The effect of salinity, light and temperature in a disposal environment on the recovery of *E. coli* following exposure to ultraviolet radiation, *Water Res.* **29**, 1373-1377

Chinese Standard for Reclaimed Water (2002a)

The reuse of urban recycling water - Water quality standard for urban miscellaneous water consumption, GB/T 18920-2002

Chinese Standard for Reclaimed Water (2002b)

The reuse of urban recycling water - Water quality standard for scenic environment use, GB/T 18921-2002

Chinese Standard for Reclaimed Water (2005)

The reuse of urban recycling water - Water quality groundwater recharge, GB/T 19772-2005

Cho, M., Chung, H., Choi, W., Yoon, J. (2004)

Linear correlation between inactivation of *E. coli* and OH radical concentration in TiO₂ photocatalytic disinfection, *Water Res.* **38**, 1069-1077

Cho, M., Kim, J. H., Yoon, J. (2006)

Investigating synergism during sequential inactivation of *Bacillus subtilis* spores with several disinfectants, *Water Res.* **40**, 2911-2920

Cho, M., Gandhi, V., Hwang, T. M., Lee, S., Kim, J. H. (2011)

Investigating synergism during sequential inactivation of MS-2 phage and *Bacillus subtilis* spores with UV/H₂O₂ followed by free chlorine, *Water Res.* **45**, 1063-1070

Chrobok, K. (2003)

Desinfektionsverfahren in der Schwimmbeckenwasseraufbereitung unter besonderer Berücksichtigung des Elektrochemischen-Aktivierungs-Verfahrens zwecks Verbesserung der Beckenwasserqualität, Dissertation, Universität Bremen

Chrtak, S., Popp, W. (1991)

UV disinfection of secondary effluents from sewage treatment plants, *Water Sci. Technol.* **24**, 343-346

CIWP (Committee on Indicators for Waterborne Pathogens) (2004)

Executive summary, In: Indicators for waterborne pathogens, Council NR, The National Academies Press, pp. 1-16

Clauß, M., Mannesmann, R., Kolch, A. (2005)

Photoreactivation of *Escherichia coli* and *Yersinia enterocolitica* after irradiation with a 222 nm excimer lamp compared to a 254 nm low-pressure lamp, *Acta Hydrochim. Hydrobiol.* **33**, 579-584

Clarke, S. H. (2011)

Electrochemically generated oxidant disinfection, Technical Information Paper # 31-003-0211, US Army Public Health Command

Cornel, P., Weber, B. (2006)

Physikalisch-chemische Abwasserreinigung zur Erzeugung von Bewässerungswasser, *Wasser Abwasser* **3**, 215-220

Cornel, P., Meda, A. (2010)

Desinfektion und Wasserwiederverwendung, In: Exportorientierte Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der Wasserver- und -entsorgung, Teil II: Abwasserbehandlung und Wasserwiederverwendung, Leitfaden zur Abwassertechnologie in anderen Ländern, Ruhr Universität Bochum, pp. 66-102

Costán-Longares, A., Montemayor, M., Payán, A., Méndez, J., Jofre J., Mujeriego, R., Lucena, F. (2008)

Microbial indicators and pathogens: Removal, relationships and predictive capabilities in water reclamation facilities, *Water Res.* **42**, 4439-4448

Crook, J. (1992)

Water Reclamation, In: Encyclopedia of physical science and technology, Meyers, Academic Press, San Diego, CA, pp. 559-589

CSRIO (Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation) (2008)

Guidance for the use of recycled water by industry, Institute of Sustainability and Innovation, Victoria University, CSRIO, Land and water - For the Smart Water Fund

Darby, J. L., Snider, K. E., Tchobanoglous, G. (1993)

Ultraviolet disinfection for wastewater reclamation and reuse subject to restrictive standards, *Water Environ. Res.* **65**, 169-180

Darby, J. L., Heath, M., Jacangelo, J., Loge, F., Swaim, P., Tchobanoglous, G. (1995)

Comparison of UV irradiation to chlorination: Guidance for achieving optional UV performance, final report project 91. WWD-1, Water Environment Research Foundation

Darby, J. L., Emerick, R., Loge, F., Tchobanoglous, G. (1999)

The effect of upstream process on UV disinfection performance, final report project 96-CTS-3, Water Environment Foundation

Debus, O. (2004)

Auf die harte Tour, *Chemietechnik* **33**, 40-42

Diao, H. F., Li, X. Y., Gu, J. D., Shi, H. C., Xie, Z. M. (2003)

Electron microscopic investigation of the bacterial action of electrochemical disinfection in comparison with chlorination, ozonation and Fenton reaction, *Process Biochem.* **39**, 1421-1426

DIBt (Deutsches Institut für Bautechnik) (2005)

Zulassungsgrundsätze für allgemeine bauaufsichtliche Zulassungen für Kleinkläranlagen

DIBt (Deutsches Institut für Bautechnik) (2013)

Verzeichnis der allgemeinen bauaufsichtlichen Zulassungen, Stand 07/2013

DIN 19650 (1999)

Bewässerung, Hygienische Belange von Bewässerungswasser

DIN 19684-10 (2009)

Bodenbeschaffenheit - Chemische Laboruntersuchungen - Teil 10: Untersuchung und Beurteilung des Wassers bei Bewässerungsmaßnahmen

DIN 4261-1 (2010-10)

Kleinkläranlagen - Teil 1: Anlagen zur Schmutzwasservorbehandlung

DIN EN 1085 (2007-05)

Abwasserbehandlung-Wörterbuch, Dreisprachige Fassung, EN 1085: 2007, Beuth

Durance, C., Hofmann, R., Andrews, R. C., Brown, M. (2005)

Application of ultraviolet light for inactivation of Adenovirus, *Proceedings Disinfection 2005*, Water Environment Federation

DWA (Deutsche Vereinigung für Wasserwirtschaft, Abwasser und Abfall e. V.) (2008)

Bewertung von Verfahrensstufen zur Abwasseraufbereitung für die Wiederverwendung, *DWA-Themen*, 1-31

El-Senousy, W., Barakat, A. B., Ghanem, H. E., Kamel, M. A. (2013)

Molecular epidemiology of human adenoviruses and rotaviruses as candidate viral indicators in the Egyptian sewage and water samples, *World Appl. Sci. J.* **27**, 1235-1247

Emerick, R. W., Loge, F. J., Thompson, D., Darby, J. L. (1999)

Factors influencing ultraviolet disinfection performance part II: Association of coliform bacteria with wastewater particles, *Water Environ. Res.* **71**, 1178-1187

Emerick, R. W., Loge, F. J., Ginn, T., Darby, J. L. (2000)

Modeling the inactivation of particle-associated coliform bacteria, *Water Environ. Res.* **72**, 432-438

Feng, Ch., Suzuki, K., Zhao, Sh., Sugiura, N., Shimada, S., Maekawa, T. (2004)

Water disinfection by electrochemical treatment, *Bioresource Technol.* **94**, 21-25

Fryda, M., Herrmann, D., Schäfer, L., Klages, C. P., Perret, A., Haenni, W. (1999)

Properties of Diamond Electrodes for Wastewater Treatment, *New Diamond and Frontier Carbon Technol.* **9**, 229-240

Furuta, T., Rycken, Ph., Tanaka, H., Pupunat, L., Haenni, W., Nishiki, Y. (2004)

Legionella inactivation with diamond electrodes, *Diam. Relat. Mater.* **13**, 2016-2019

Furuta, T., Rycken, Ph., Tanaka, H., Pupunat, L., Haenni, W., Nishiki, Y. (2005)

Application of diamond electrodes for water disinfection, In: *Diam. Electrochem.*, Elsevier-Verlag, pp. 525-542

Gao, Y. (1998)

Elektrochemische Wasserdeseinfektion, *WAP* **01**, 20-25

Gehr, R., Wright, H. (1998)

UV disinfection of wastewater coagulated with ferric chloride: Recalcitrance and fouling problems, *Water Sci. Technol.* **38**, 15-23

Gelzhäuser, P. (1989)

Keimreduktion im Abwasser durch UV-Bestrahlung, *Korrespondenz Abwasser* **36**, 68-75

Gleick, P. H. (1998)

Water in crisis: Paths to sustainable water use, *Ecol. Appl.* **8**, 571-579

Gleick, P. H. (2000)

The changing water paradigm: A look at twenty-first century water resources development, *Water Inter.* **25**, 127-138

Gogate, P. R., Pandit, A. B. (2004)

A review of imperative technologies for wastewater treatment II: hybrid methods, *Advances Environ. Res.* **8**, 553-597

Gómez, M., Plaza, F., Garralón, G., Pérez, J., Gómez, M. A. (2007)

A comparative study of tertiary wastewater treatment by physico-chemical-UV process and macrofiltration-ultrafiltration technologies, *Desalination* **202**, 369-376

Grabow, W. (1996)

Waterborne diseases: Update on water quality assessment and control, *Water SA* **22**, 193-202

Grabow, W. (2001)

Bacteriophages: Update on application as models for viruses in water, *Water SA* **27**, 251-268

Grambow, M. (2013)

Nachhaltige Wasserbewirtschaftung: Konzept und Umsetzung eines vernünftigen Umgangs mit dem Gemeingut Wasser, Springer-Vielweg-Verlag

Guo, M., Hu, H., Bolton, J., El-Din, M. G. (2009)

Comparison of low- and medium-pressure ultraviolet lamps: photoreactivation of *Escherichia coli* and total coliforms in secondary effluents of municipal wastewater treatment plants, *Water Res.* **43**, 815-821

Haenni, W., Gobet, J., Pupunat, L., Rychen, Ph., Correa, B. (2001)

Loop-controlled chlorine production for disinfection of pool-water using boron-doped diamond electrodes, *Electrochem. Soc. Proc.* **25**, 16-23

Harris, G. D., Adams, V. D., Sorensen, D. L., Curtis, M. S. (1987)

Ultraviolet inactivation of selected bacteria and viruses with photoreactivation of the bacteria, *Water Res.* **21**, 687-692

He, Y. Y., Hader, D. P. (2002)

Reactive oxygen species and UVB: Effect on cyanobacteria, *Photochem. Photobiol. Sci.* **1**, 729-736

Henry, V., Heilbronner, A., Recklinghausen, M. (1910)

Nouvelles recherches sur la sterilization de grandes quantites d'eau par les rayons ultraviolets, *Comp. Rend. Acad. Sci.* **151**, 677-680

Hijnen, W. A. M., Beerendonk, E. F., Medema, G. J. (2006)

Inactivation credit of UV radiation for viruses, bacteria and protozoan (oo)cysts in water: A review, *Water Res.* **40**, 3-22

Ho, K. W. A., Bohm, P. (1981)

UV disinfection of tertiary and secondary effluents, *Water Poll. Res. J. Canada* **16**, 33-44

Hochstrat, R., Wintgens, T., Melin, T. (2008)

Development of integrated water reuse strategies, *Desalination* **218**, 208-217

Höll, K. (2002)

Wasser, Nutzung im Kreislauf, Hygiene, Analyse und Bewertung, de Gruyter-Verlag

Hoyer, O. (1998)

Testing performance and monitoring of UV systems for drinking water disinfection, *Water Supply* **16**, 424-429

Hu, J., Queck, P. H. (2008)

Effects of UV radiation on photolyase and implications with regards to photoreactivation following low- and medium-pressure UV disinfection, *Appl. Environ. Microbiol.* **74**, 327-328

Huber, S. (2008)

Bakteriophagen, In: Hygienisch-mikrobiologische Wasseruntersuchung in der Praxis, Wiley-VCH-Verlag, pp. 233-245

Ilian, J. (2007)

Ablaufwerte und Eingangsgrößen bei WSB®-Anlagen, Vortrag innerhalb des AiF-Projekttreffens, TU Dresden

Ilian, J. (2010)

Biofiltration und elektrochemische Behandlung zur Brauchwassererzeugung aus Kleinkläranlagenabläufen, Dissertation, BTU Cottbus

IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) (2007)

Klimaänderung 2007: Zusammenfassungen für politische Entscheidungsträger, vierter Sachstandsbericht des IPCC (AR4), deutsche Übersetzung

Jeong, J., Kim, J. Y., Yoon, J. (2006)

The role of reactive oxygen species in the electrochemical inactivation of microorganisms, *Environ. Sci. Technol.* **40**, 6117-6122

Jeong, J. J., Kim, Ch., Yoon, J. (2009)

The effect of electrode material on the generation of oxidants and microbial inactivation in the electrochemical disinfection process, *Water Res.* **43**, 895-901

Jolis, D., Lam, C., Pitt, P. (2001)

Particle effects on ultraviolet disinfection of coliform bacteria in recycled water, *Water Environ. Res.* **73**, 233-236

Jung Jung, Y., Soo Oh, B., Kang, J. W. (2008)

Synergistic effect of sequential or combined use of ozone and UV radiation for the disinfection of *Bacillus subtilis* spores, *Water Res.* **42**, 1613-1621

Jyoti, K. K., Pandit, A. B. (2001)

Water disinfection by acoustic and hydrodynamic cavitation, *Biochem. Eng. J.* **7**, 201-212.

Kalisvaart, B. F. (2004)

Reuse of wastewater: preventing recovery of pathogens by using medium-pressure UV lamp technology, *Water Si. Technol.* **50**, 337-344

Kashimada, K., Kamiko, N., Yamamoto, K., Ohgaki, S. (1996)

Assessment of photoreactivation following ultraviolet light disinfection, *Water Sci. Technol.* **33**, 261-269

Khaengrang, R., Reed, R. H. (2005)

Oxygen and photoinactivation of *Escherichia coli* in UV A and sunlight, *Appl. Microbiol.* **99**, 39-50

Khelifa, A., Moulay, S., Hannane, F., Benslimene, S., Hecini, M. (2004)

Application of an experimental design method to study the performance of electrochlorination cells, *Desalination* **160**, 91-98

Kirmaier, N., Schöberl, M. (1980)

Die anodische Oxidation als neues Praxisverfahren zur Wasserdesinfektion, *GIT Fachz. Lab.* **24**, 443-455

Kirmaier, N., Hose, G. H., Reis, A. (1984)

Theorie, Verfahrenstechnik und Praxisergebnisse der anodischen Oxidation, *Neue DELIWA Zeitschrift* **6**, 260-266

Kitajima, M., Iker, B., Pepper, I. L., Haramoto, E., Gerba, C. P. (2013)

Seasonal occurrence and reduction of viruses and protozoa in two wastewater reclamation facilities in southern arizona, 17th Annual Water Reuse and Desalination Conference, Phoenix

Kluge, T., Hansjürgens, B., Hiessl, H., Schramm, E. (2010)

Wasser 2050: Nachhaltige wasserwirtschaftliche Systemlösungen – künftige Chancen für die deutsche Wasserwirtschaft, Schlussbericht des BMBF-Projektes mit dem Förderkennzeichen 02WT0820

Koivunen, J., Heinonen-Tanski, H. (2005)

Inactivation of enteric microorganisms with chemical disinfectants, UV irradiation and combined chemical/UV treatments, *Water Res.* **39**, 1519-1526

Koukouraki, E., Diamadopoulos, E. (2002)

THM formation during chlorination of treated municipal wastewater, *Water Sci. Technol.* **2**, 235-242

Kraft, A. (1999a)

Anodische Oxidation zur Wasserreinigung und -desinfektion, *WLB* **9**, 42-46

Kraft, A., Stadelmann, M., Blaschke, M., Kreysig, D., Sandt, B., Schröder, F.,

Rennau, J. (1999b)

Electrochemical water disinfection Part II: Hypochlorite production from potable water, chlorine consumption and the problem of calcareous deposits, *J. Appl. Electrochem.* **29**, 895-902

Kraft, A., Stadelmann, M., Blaschke, M., Kreysig, D., Sandt, B., Schröder, F.,

Rennau, J. (1999c)

Electrochemical water disinfection Part I: Hypochlorite production from very dilute chloride solutions, *J. Appl. Electrochem.* **29**, 861-868

Kraft, A., Wünsche, M., Stadelmann, M., Kirstein, W. (2000)

Einsatz von Diamantelektroden für die elektrolytische Wasserreinigung und -desinfektion durch Anodische Oxidation, *Galvanotechnik* **91**, 335-339

Kraft, A., Wünsche, M., Stadelmann, M., Blaschke, M. (2003a)

Electrochemical water disinfection, *Recent Res. Devel. Electrochem.* **6**, 27-55

Kraft, A. (2003b)

Electrochemical water disinfection: A short review, *Platinum Metals Rev.* **52**, 177-185

Kraft, A. (2004)

Elektrochemische Verfahren zur Wasserbehandlung, *Vom Wasser* **102**, 3-40

Kraft, A., Wünsche, M., Stadelmann, M., Blaschke, M. (2006)

Elektrochemische Verfahren zur Keimeliminierung, Desinfektion belasteter Wässer - Elektrochemische Verfahren zur kostengünstigen und sicheren Desinfektion stark belasteter Wässer, *Industrie und Wasser* **9**, 36-40

Kruithof, J. C., van der Leer, R. C., Hijnen, W. A. M. (1992)

Practical experiences with UV disinfection in the Netherlands, *J. Water SRT-Aqua* **41**, 88-94

Kuo, D. H. W., Simmons, F., Blair, S., Hart, E., Rose, J. B., Xagoraki, I. (2010)

Assessment of human adenovirus removal in a full-scale membrane bioreactor treating municipal wastewater, *Water Res.* **44**, 1520-1530

Lange, J., Otterpohl, R. (2000)

Abwasser - Handbuch zu einer zukunftsfähigen Wasserwirtschaft-Ökologie Aktuell

Lazarova, V., Janex, M., Fiksdal, L., Oberg, C., Barcina, I., Pommepuy, M. (1998)

Advanced wastewater disinfection technologies: Short and long term efficiency, *Water Si. Technol.* **38**, 109-117

Lazarova, V. (2001)

Recycled water: Technical-economic challenges for its integration as a sustainable alternative resource, proceedings UNESCO Int. symp. Les frontières de la gestion de l'eau urbaine: impasse ou espoir?, Marseilles

Lazarova, V., Savoye, Ph. (2004)

Technical and sanitary aspects of wastewater disinfection by UV irradiation for landscape irrigation, *Water Sci. Technol.* **50**, 203-209

Leclerc, H., Edberg, S., Pierzo, V., Delattre, J. M. (2000)

Bacteriophages as indicators of enteric viruses and public health risk in groundwaters, *J. Appl. Microbiol.* **88**, 5-21

Li, X. Y., Diao, H. F., Gu, J. D., Ding, F., Shi, H. C., Xie, Z. M. (2004a)

Electron microscopic investigation of the bactericidal action of electrochemical disinfection in comparison with chlorination, ozonation and Fenton reaction, *Process Biochem.* **39**, 1421-1426

Li, X. Y., Diao, H. F., Fan, F. X. J., Gu, J. D., Ding, F., Tong, A. S. F. (2004b)

Electrochemical wastewater disinfection: Identification of its principal germicidal actions, *J. Environ. Engineering* **130**, 1217-1221

Liberti, L., Lopez, A., Notarnicola, M., Barnea, N., Pedahzur, R., Fattal, B. (2000)

Comparison of advanced disinfection methods for municipal wastewater reuse in agriculture, *Water Sci. Technol.* **42**, 215-220

Liberti, L., Notarnicola, M., Petruzelli, D. (2002)

Advanced treatment for municipal wastewater reuse in agriculture. UV disinfection: parasite removal and by-product formation, *Desalination* **152**, 315-324

Lindenauer, K. G., Darby, J. L. (1994)

UV-disinfection of wastewater: Effect of dose on subsequent photoreactivation, *Wat. Res.* **28**, 805-817

Locas, A., Demers, J., Payment, P. (2008)

Evaluation of photoreactivation of *Escherichia coli* and *Enterococci* after UV disinfection of municipal wastewater, *Can. J. Microbiol.* **54**, 971-975

Loge, F. J., Emerick, R. W., Thompson, D. E., Nelson, D. C., Darby, J. L. (1996)

Ultraviolet disinfection of secondary wastewater effluents: Prediction of performance and design, *Water Environ. Res.* **68**, 900-916

Loge, F. J., Emerick, R. W., Thompson, D. E., Nelson, D. C., Darby, J. L. (1999)

Factors influencing ultraviolet disinfection performance part I: Light penetration to wastewater particles, *Water Environ. Res.* **71**, 377-381

Loge, F. J., Bourgeois, K., Emerick, R. W., Darby, J. L. (2001)

Variations in wastewater quality influencing UV disinfection performance: Relative impact on filtration, *J. Environ. Eng.* **127**, 832-837

Loucks, D. P. (2000)

Sustainable water resources management, *Water Inter.* **25**, 3-10

Lubello, C., Caretti, C., Gori, R. (2002)

Comparison between PAA/UV and H₂O₂/UV disinfection for wastewater reuse, *Water Sci. Technol. Water Supply* **2**, 205-212

Madge, B. A., Jensen, J. N. (2006)

Ultraviolet disinfection of faecal coliforms in municipal wastewater: Effects of particle size, *Water Environ. Res.* **78**, 294-304

Mamane, H., Shemer, H., Linden, K. G. (2007)

Inactivation of *E. coli*, *B. subtilis* spores, and MS2, T4, and T77 phage using UV/H₂O₂ advanced oxidation, *J. Hazard. Mater.* **146**, 479-486

Mamane, H. (2008)

Impact of particles on UV disinfection of water and wastewater effluents: A review, *Reviews Chem. Eng.* **24**, 67-157

Mantovani, P., Asano, T., Chang, A., Okun, D. A. (2001)

Management practices for nonpotable water reuse, WERF, Schlussbericht 97-IRM-6

Mara, D. D., Sleight, P. A., Blumenthal, U. J., Carr, R. M. (2005)

Health risks in waste water irrigation: Comparing estimates from quantitative microbial risk analysis and epidemiological studies, *J. Water Health* **5**, 39-50

Marselli, B., Garcia-Gomez, J., Michaud, P. A., Rodrigo, M. A., Cominellis, C. (2003)

Electrogeneration of hydroxyl radicals on boron-doped diamond electrodes, *J. Electrochem. Soc.* **150**, D 79

Meda, A., Müller, K., Cornel, P. (2010)

Untersuchung der Randbedingungen für die Wasserwiederverwendung und Kernprojektkoordinierung, Schlussbericht des BMBF-Projektes mit dem Förderkennzeichen 02WA0735

MEDAWARE, European Commission, Euro-Mediterranean Partnership (2005)

Development of tools and guidelines for the promotion of the sustainable urban wastewater treatment and reuse in agricultural production in the mediterranean countries, task 5-Jordan: Development of specifications for urban wastewater utilization

Meneses, M., Pasqualino, J., Castells, F. (2010)

Environmental assessment of urban wastewater reuse: Treatment alternatives and applications, *Chemosphere* **81**, 266-272

Merkblatt ATV-M 205 (Abwassertechnische Vereinigung e. V.) (1998)

Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser, ATV-Regelwerk Abwasser-Abfall

Merkblatt DWA-A-222 (2011)

Grundsätze für Bemessung, Bau und Betrieb von kleinen Kläranlagen mit aerober biologischer Reinigungsstufe bis 1.000 Einwohnerwerte, DWA-Regelwerk

Merkblatt DWA-M-205 (2013)

Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser, DWA-Regelwerk

Ministry of Construction (1981)

Technical guideline for reuse of treated wastewater (draft), Tokyo, Japan

Ministry of Construction and Advanced Treatment Council (1990)

Manual for the criteria on the quality of treated wastewater for aesthetic and recreational use, Tokyo, Japan

Mir, J., Morató, J., Ribas, F. (1997)

Resistance to chlorine of freshwater bacterial strains, *J. Appl. Environ. Microbiol.* **82**, 7-18

Montemayor, M., Costan, A., Lucena, F., Jofre, J., Munoz, J., Dalmau, E., Mujeriego, R., Sala, L. (2008)

The combined performance of UV light and chlorine during reclaimed water disinfection, *Water Sci. Technol.* **57**, 935-940

Montgomery, J. M. (1985)

Water treatment principles and design, John Wiley & Sons, Inc.

Murphy, H. M., Payne, S. J., Gagnon, G. A. (2008)

Sequential UV- and chlorine-based disinfection to mitigate *Escherichia coli* in drinking water biofilms, *Water Res.* **42**, 2083-2092

Nazaroff, W. W., Alvarez-Cohen, L. (2001)

Environmental Engineering Science, Wiley-VCH-Verlag

Nelson, K. L. (2000)

Ultraviolet light disinfection of wastewater stabilization pond effluents, *Water Sci. Technol.* **42**, 165-170

Ogoshi, M., Suzuki, Y., Asano, T. (2001)

Water reuse in Japan, *Water Sci. Technol.* **43**, 17-23

Oguma, K., Katayama, H., Mitani, H., Morita, S., Hirata, T., Ohgaki, S. (2001)

Determination of pyrimidine dimers in *Escherichia coli* and *Cryptosporidium parvum* during UV light inactivation, photoreactivation and dark repair, *Appl. Environ. Microbiol.* **67**, 4630-4637

Oguma, K., Katayama, H., Ohgaki, S. (2002)

Photoreactivation of *Escherichia coli* after low- or medium-pressure UV disinfection determined by an endonuclease sensitive site assay, *Appl. Environ. Microbiol.* **68**, 6029-6035

Oguma, K., Katayama, H., Ohgaki, S. (2004)

Photoreactivation of *Legionella pneumophila* after inactivation by low- or medium-pressure ultraviolet lamp, *Water Res.* **38**, 2757-2763

Oldenburg, M., Meininger, F., Nisipeanu, P., Schneider, C. (2008)

Begrifflichkeiten und Kennzahlen zur Zusammensetzung von Teilströmen neuartiger Sanitärsysteme, *Korrespondenz Abwasser Abfall* **01**, 1113-1119

Oppenlander, T. (2007)

Mercury-free sources of VUV/UV radiation: Application of modern excimer lamps (exilamps) for water and air treatment, *J. Environ. Eng. Sci.* **6**, 253-264

Palmas, S., Polcaro, A. M., Vacca, A., Mascia, M., Ferrara, F. (2007)

Influence of the operating conditions on the electrochemical disinfection process of natural waters at BDD electrodes, *J. Appl. Electrochem.* **37**, 1357-1365

Panizza, M., Cerisola, G. (2005)

Application of diamond electrodes to electrochemical processes, *Electrochim. Acta* **51**, 191-199

Papadopoulos, I. (1995)

Non conventional water resources: Present situation and perspective use for irrigation, In: International Seminar on Economic Aspects of Water Management in the Mediterranean Area, pp. 54-76

Parker, J. A., Darby, J. L. (1995)

Particle-associated coliforms in secondary effluents: Shielding from ultraviolet light disinfection, *Water Environ. Res.* **67**, 1065-1075

Pennell, K. G., Aronson, A. I., Blatchley, E. R. (2008)

Phenotypic persistence and external shielding ultraviolet radiation inactivation kinetic model, *J. Appl. Microbiol.* **104**, 1192-1202

Pfeiffer, W. (1993)

Abwasserdesinfektion durch UV-Bestrahlung - Hintergründe, Erfahrungen, Möglichkeiten, Grenzen und gewässerwirtschaftliche Bedeutung, Düker UV-Technologie

Pfeiffer, G. P., You, Y. H., Besaratinia, A. (2005)

Mutations induced by ultraviolet light, *Mutat. Res.-Fund. Mol. M.* **571**, 19-31

Popp, W., Huber, S., Gierig, M., Manz, W. (1998)

In-situ-Charakterisierung bakterieller Belege auf Quarzschutzrohren von UV-Bestrahlungsanlagen im Kläranlagenablauf, *Münchner Beiträge zur Abwasser-, Fischerei und Flussbiologie* **52**, 73-88

Popp, W. (1999)

Desinfektion von Abwasser zur Wiederverwendung, *Schriftenreihe WAR* **116**, 155-182

Popp, W. (2001)

Hygienische Anforderungen an gereinigtes Abwasser und Abwasserdesinfektion, In: DESAR (Decentralized Sanitation and Reuse) Kleine Kläranlagen und Wasserwiederverwendung, 30. Abwassertechnische Seminar, 13. DECHEMA-Fachgespräch Umweltschutz, Berichte aus Wassergüte- und Abfallwirtschaft, pp. 185-215

Qualls, R. G., Flynn, M. P., Johnson, D. (1983)

The role of suspended particles in ultraviolet disinfection, *J. WPCF* **55**, 1280-1285

Qualls, R. G., Ossoff, S. F., Chang, J. C. H., Dorfman, M. H., Dumais, C. M., Lobe, D. C., Johnson, J. D. (1985)

Factors controlling sensitivity in ultraviolet disinfection of secondary effluents, *J. WPCF* **57**, 1006-1011

Queck, P. H., Hu, J. (2008a)

Indicators for photoreactivation and dark repair studies following ultraviolet disinfection, *J. Ind. Microbiol. Biotechnol.* **35**, 533-541

Queck, P. H., Hu, J. (2008b)

Influence of photoreactivating light intensity and incubation temperature on photoreactivation of *Escherichia coli* following LP and MP UV disinfection, *J. Appl. Microbiol.* **105**, 124-133

Rajala-Mustonen, R. L., Toivola, P. S., Heinonen-Tanski, H. (1997)

Effects of peracetic acid and UV irradiation on the inactivation of coliphages in wastewater, *Water Sci. Technol.* **35**, 237-241

Rajala, R. L., Pulkkanen, M., Pessi, M., Heinonen-Tanski, H. (2003)

Removal of microbes from municipal wastewater effluent by rapid sand filtration and subsequent UV irradiation, *Water Sci. Technol.* **47**, 157-162

Reis, A. (1951)

Die anodische Oxidation als Inaktivator pathogener Substanzen und Prozesse, *Klin. Wschr.* **29**, 484-485

Reis, A. (1976)

Keimtötung und Abbau organischer Schadstoffe durch die anodische Oxidation, *GIT Fachz. Lab.* **20**, 197-204

Richtlinie des Rates (1991)

Richtlinie des Rates vom 21. Mai 1991 über die Behandlung von kommunalem Abwasser, 91/271/EWG

Rüden, H., Kampf, W. D. (2009)

Sterilisation und Desinfektion, In: Medizinische Mikrobiologie und Infektiologie, Springer-Verlag, pp. 166-171

Rudolph, K. U., Schäfer, D. (2002)

Zum Stand alternativer Wassersysteme - Systemübersicht, Auswahlkriterien, Projekterfahrungen, Projektbeispiele, Anwendungstypen, Zukunftsperspektiven, In: Seminarband: Praxis-

erfahrungen mit Techniken für „abwasserfreie Häuser“ – Beispiele, Einsatzbereiche, rechtliche und wirtschaftliche Aspekte, Technische Akademie Hannover e.V.

Russell, P., Liefhebber, M. (1997)

Potable water treatment and reuse of domestic wastewater in the CMHC Toronto 'healthy house', *ASTM Special Technical Publication* **1324**, 176-187

Saby, S., Sibille, Y., Mathieu, L., Paquin, J. L., Block, J. C. (1997)

Influence of water chlorination on the counting of bacteria with DAPI, *Appl. Environ. Microbiol.* **58**, 1564-1569

Salcedo, I., Andrade, J. A., Quiroga, J. M., Nebot, E. (2007)

Photoreactivation and dark repair in UV-treated microorganisms: Effect of temperature, *Appl. Environ. Microbiol.* **73**, 1594-1600

Sancar, G. B., Smith, F. W., Sancar, A. (1985)

Binding of *E. coli* DNA photolyase to UV-irradiated DNA, *Biochemistry* **24**, 1849-1855

Sanz, E. N., Dávila, I. S., Balao, J. A. A., Alonso, J. M. Q. (2007)

Modelling reactivation after UV disinfection: Effect of UVC dose on subsequent photoreactivation and dark repair, *Water Res.* **41**, 3141-3151

Savoye, P., Janex, M. L., Larazova, V. (2001)

Wastewater disinfection by low-pressure UV and ozone: A design approach based on water quality, *Water Sci. Technol.* **43**, 163-171

Scheible, O. K., Casey, M. C., HydroQual, Inc. (1985)

Ultraviolet disinfection of wastewaters from secondary effluent and combined sewer overflows, Water Engineering Research Division, Cincinnati, Ohio

Schmalz, V., Dittmar, T., Haaken, D., Worch, E. (2009)

Electrochemical disinfection of biologically treated local sewage by using boron-doped diamond (BDD) electrodes – contribution for direct reuse of domestic wastewater, *Water Res.* **43**, 5260-5266

Schmidt, V. M. (2003)

Elektrochemische Verfahrenstechnik, Grundlagen, Reaktionskinetik, Prozessoptimierung, Wiley-VCH-Verlag

Schöler, A. (2002)

UV-Desinfektion von Kläranlagenabläufen unter besonderer Berücksichtigung des Einflusses suspendierter Stoffe, Dissertation, Universität Stuttgart

Sedlmeier, K. (2008)

Wasseraufbereitung mit UV LEDs, Seminarvortrag, Universität Stuttgart

Seo, G. T., Lee, T. S., Moon, B. H. and Lim, J. H. (2001)

Ultrafiltration combined with ozone for domestic laundry wastewater reclamation and reuse, *Water Sci. Technol.: Water Supply* **1**, 387-392

Shang, Ch., Cheung, L. M., Liu, W. (2007)

MS2 coliphage inactivation with UV irradiation and free chlorine/monochloramine, *Environ. Eng. Sci.* **24**, 1321-1332

Sharrer, M. J., Summerfelt, S. T. (2007)

Ozonation followed by ultraviolet irradiation provides effective bacteria inactivation in a freshwater recirculating system, *Aquacult. Eng.* **37**, 180-191

Singer, P. C., Weinberg, H. S., Brophy, K., Liang, L., Roberts, M., Grissted, I., Krasner, S., Baribeau, H., Arora, H., Najm, I. (2002)

Relative dominants of haloacetic acids and trihalomethanes in treating drinking water, Awwa Research Foundation, Colorado

Sobsey, M. D., Casteel, M. J., Chung, H., Lovelace, G., Simmons, O. D., Meschke, J. S. (1998)

Innovative technologies for wastewater disinfection and pathogen detection, In: Proceedings Disinfection '98, The latest trends in wastewater disinfection: Chlorination versus UV disinfection, Water Environment Federation Technical Exhibit and Conference, Baltimore, pp. 483-493

Sommer, R. (1996)

Biodosimetrische Untersuchung der Desinfektionsleistung von UV-Anlagen, Vortrag im Rahmen des Lehrgangs: Desinfektion von Trinkwasser und Keimreduktion von Abwasser durch UV-Bestrahlung, Technische Akademie Esslingen

Son, H., Cho, M., Chung, H., Choi, S., Yoon, J. (2004)

Bactericidal activity of mixed oxidants: Comparison with free chlorine, *J. Ind. Eng. Chem.* **10**, 705-709

Stanfield, G., Lechevallier, M., Snozzi, M. (ohne Jahreszahlangabe)

Treatment efficiency, WHO Sanitation and Health, dwq 9241546301, chapter 5, 159-178

Stock, M. (2004)

Mögliche Auswirkungen des Klimawandels auf die Wasserwirtschaft, In: Tagungsband der ATV-DVWK-Bundestagung, pp. 65-81

Tchobanoglous, G., Angelakis A. N. (1996)

Technologies for wastewater treatment appropriate for reuse potential for application in Greece, *Water Sci. Technol.* **33**, 15-24

Templeton, M. R., Andrews, R. C., Hofman, R. (2005)

Inactivation of particle-associated viral surrogates by ultraviolet light, *Water Res.* **39**, 3487-3500

Tenne, R., Levy-Clement, C. (1998)

Diamond Electrodes, *Israel J. Chem.* **38**, 57-73

Tessele, F., Monteggia, L. O., Rubio, J. (2005)

Treatment of municipal wastewater UASB reactor effluent by unconventional flotation and UV disinfection, *Water Sci. Technol.* **52**, 315-322

Thürigen, F. (2012)

In-line Elektrolyse zur Trinkwasserdesinfektion - Einfluss des Elektrodentyps auf die Zusammensetzung eines Oxidationsmittelgemisches bei der Elektrolyse von Modellwasser, Diplomarbeit, TU Dresden

Tosa, K., Hirata, T. (1999)

Photoreactivation of enterohemorrhagic *Escherichia coli* following UV disinfection, *Water Res.* **33**, 361-366

Townshend, A. R., Jowett, E. C., LeCraw, R. A., Waller, D. H., Paloheimo, R., Ives, C.,

Tröster, I., Schäfer, L., Fryda, M., Matthée, T. (2002)

Electrochemical advanced oxidation process using DiaChem electrodes, *Water Sci. Technol.* **49**, 207-212

Tyrell, S., Ripley, S. P., Watkins, W. D. (1995)

Inactivation of bacterial and viral indicators in secondary sewage effluents using chlorine and ozone, *Water Res.* **29**, 2483-2490

Udert, K. (2007)

NoMix beginnt im Badezimmer, *Eawag News* **63d**, 11-13

Umweltbundesamt (2012)

Bekanntmachung der Liste der Aufbereitungsstoffe und Desinfektionsverfahren gemäß § 11 der Trinkwasserverordnung - 17. Änderung

United Nations (1995)

United Nations sustainable development: United Nations Conference on Environment and Development, Rio de Janeiro, Brazil, 3 to 14 June 1992: AGENDA 21

United Nations (2004)

World populations prospects: The 2002 revision, analytical report

UNESCO (United Nations Educational, Scientific and Cultural Organization) (2012)

The United Nations world water development report: Managing water under uncertainty and risk, 4th edition, volume 1

UNEP (United Nations Environment Programme) (2007)

Global Environment Outlook (GEO): Environment for development, 4th assessment report

US EPA (United States Environmental Protection Agency) (1999)

Alternative disinfectants and oxidants, Guidance Manual, EPA 815-R-99-014

US EPA (2012)

Guidelines for water reuse, EPA/600/R-12/618

Veschetti, E., Cutilli, D., Bonadonna, L., Briancesco, R., Martini, C., Cecchini, G., Anatasi, P., Ottaviani, M. (2003)

Pilot plant comparative study of peracetic acid and sodium hypochlorite wastewater disinfection, *Water Res.* **37**, 78-94

von Gunten, U. (2003)

Ozonation of drinking water: Part II. Disinfection and by-product formation in presence of bromide, iodide or chlorine, *Water Res.* **37**, 1469-1487

Wagner, M., Brumelis, D., Gehr, R. (2002)

Disinfection of wastewater by hydrogen peroxide or peracetic acid: development of procedures for measurement of residual disinfectant and application to a physiochemically treated municipal effluent, *Water Environ. Res.* **74**, 33-50

Wang, J. L., Wang, B. Z., Wang, L., Zhang, J. S., Huang, W. Z. (2006)

Suspended particle effects on ClO_2 /ultraviolet light combined disinfection of effluent, *J. Environ. Sci.-China* **18**, 634-638

Wang, X., Hu, X., Wang, H., Hu, Ch. (2012)

Synergistic effect of the sequential use of UV irradiation and chlorine to disinfect reclaimed water, *Water Res.* **46**, 1225-1232

WCED (World Commission on Environment and Development) (1987)

Our common future, report of the World Commission on Environment and Development

WERF (Water Environment Research Foundation) (2004)

Water for reuse: Reduction of pathogens, indicator bacteria and alternative indicators by wastewater treatment and reclamation processes, final report, Water Environment Research Foundation

WERF (2008)

Disinfection of wastewater effluent - comparison of alternative technologies, final report, Water Environment Research Foundation

Wendt, A. (2013)

Untersuchung des Einflusses anlagenspezifischer Parameter auf die elektrochemische Generierung von freiem Chlor in Modellwässern und deren Auswirkung auf die Elektrodenlebensdauer für ausgewählte Elektrodentypen, Diplomarbeit, TU Dresden

Whitby, G. E., Palmateer, G. (1993)

The effect of UV transmission, suspended solids and photoreactivation on microorganisms in wastewater treated with UV light, *Water Sci. Technol.* **27**, 379-389

White, G. C. (1999)

Handbook of Chlorination and alternative Disinfectants, Wiley-VCH-Verlag

WHO (World Health Organisation) (2006)

Guidelines for the safe use of wastewater, excreta and greywater: wastewater use in agriculture

WHO (2008)

Guidelines for drinking water quality, incorporating the 1st and 2nd addenda, recommendations, 3rd ed., Geneva

Wolf, S. (2005)

Evaluierung der hygienischen Wasserqualität unter besonderer Berücksichtigung von Bakteriophagen am Beispiel eines Tageausees, Dissertation, TU Dresden

Yoon, C. G., Jung, K. W., Jang, J. H. (2007)

Microorganisms repair after UV-disinfection of secondary-level effluent for agricultural reuse, *Paddy Water Environ.* **5**, 57-62

Zimmer, J. L., Slawson, R. M. (2002)

Potential repair of *Escherichia coli* DNA following exposure to UV radiation from both medium- and low-pressure UV sources used in drinking water treatment, *Appl. Environ. Microbiol.* **68**, 3293-3299

Zimmer, J. L., Slawson, R. M., Huck, P. M. (2003)

Inactivation and potential repair of *Cryptosporidium parvum* following low- and medium-pressure ultraviolet irradiation, *Water Res.* **37**, 3517-3523

Zukovs, G., Kollar, J., Monteith, H. D., Ho, K. W. A., Ross, S. A. (1986)

Disinfection of low quality wastewaters by ultraviolet light irradiation, *J. WPCF* **58**, 199-209

3. Publikationen

3.1 Influence of operating conditions and wastewater-specific parameters on the electrochemical bulk disinfection of biologically treated sewage at boron-doped diamond (BDD) electrodes

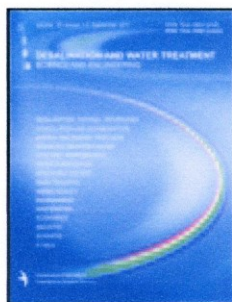
Die Untersuchungen wurden innerhalb des Forschungsprojektes „Entwicklung eines Moduls zur Hygienisierung von Abwässern auf Grundlage der Diamantelektrodenteknik“ in Kooperation mit der Firma Bergmann Clean Abwassertechnik GmbH durchgeführt und von der Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen "Otto von Guericke" e.V. finanziell unterstützt.

This article was downloaded by: [SLUB Dresden], [Thomas Dittmar]

On: 28 January 2013, At: 05:12

Publisher: Taylor & Francis

Informa Ltd Registered in England and Wales Registered Number: 1072954 Registered office: Mortimer House, 37-41 Mortimer Street, London W1T 3JH, UK



Desalination and Water Treatment

Publication details, including instructions for authors and subscription information:

<http://www.tandfonline.com/loi/tdwt20>

Influence of operating conditions and wastewater-specific parameters on the electrochemical bulk disinfection of biologically treated sewage at boron-doped diamond (BDD) electrodes

Daniela Haaken^a, Thomas Dittmar^a, Viktor Schmalz^a & Eckhard Worch^a

^a Institute of Water Chemistry, Dresden University of Technology, 01062, Dresden, Germany

Phone: Tel. +49 351 463 33872 Fax: Tel. +49 351 463 33872

Version of record first published: 05 Apr 2012.

To cite this article: Daniela Haaken, Thomas Dittmar, Viktor Schmalz & Eckhard Worch (2012): Influence of operating conditions and wastewater-specific parameters on the electrochemical bulk disinfection of biologically treated sewage at boron-doped diamond (BDD) electrodes, Desalination and Water Treatment, 46:1-3, 160-167

To link to this article: <http://dx.doi.org/10.1080/19443994.2012.677523>

PLEASE SCROLL DOWN FOR ARTICLE

Full terms and conditions of use: <http://www.tandfonline.com/page/terms-and-conditions>

This article may be used for research, teaching, and private study purposes. Any substantial or systematic reproduction, redistribution, reselling, loan, sub-licensing, systematic supply, or distribution in any form to anyone is expressly forbidden.

The publisher does not give any warranty express or implied or make any representation that the contents will be complete or accurate or up to date. The accuracy of any instructions, formulae, and drug doses should be independently verified with primary sources. The publisher shall not be liable for any loss, actions, claims, proceedings, demand, or costs or damages whatsoever or howsoever caused arising directly or indirectly in connection with or arising out of the use of this material.



Influence of operating conditions and wastewater-specific parameters on the electrochemical bulk disinfection of biologically treated sewage at boron-doped diamond (BDD) electrodes

Daniela Haaken, Thomas Dittmar*, Viktor Schmalz, Eckhard Worch

*Institute of Water Chemistry, Dresden University of Technology, 01062 Dresden, Germany
Tel. +49 351 463 33872; Fax: +49 351 463 37271; email: Thomas.Dittmar@tu-dresden.de*

Received 26 August 2011; Accepted 19 February 2012

ABSTRACT

The aim of this study was to investigate an electrochemical process for bulk disinfection of biologically treated sewage. The influence of operating conditions (current density and flow rate) on the electrochemical formation of free chlorine in the sewage was determined. Furthermore, the effect of wastewater-specific parameters on the inactivation of *Escherichia coli* was studied. The disinfection capacity is primarily influenced by the concentration of electrochemically produced free chlorine. The production rate of free chlorine is independent of the flow rate within the range of 25–125 L h⁻¹. The investigations have also shown that the electrochemical disinfection of *E. coli* in secondary effluents with BDD electrodes proceeds effectively at an electric charge input of 0.1–0.15 Ah L⁻¹ corresponding to an energy expenditure of 2.0–2.6 kWh m⁻³. The electrochemically generated concentration of free chlorine ($c = 0.4\text{--}0.6\text{ mg L}^{-1}$) is sufficient for an *E. coli* reduction of four log levels under the following conditions: after-reaction time of 15–20 min, $T > 6^\circ\text{C}$, $\text{pH} < 8.5$ and $\text{DOC} < 22\text{ mg L}^{-1}$. The formation of organic by-products (AOX, THMs) was marginal to moderate. The inorganic by-products chlorate (1.2 mg L^{-1}) and perchlorate (18 mg L^{-1}) were produced in considerable concentrations.

Keywords: Electrochemical disinfection; Wastewater reclamation; *E. coli*; Boron-doped diamond electrode; Electrochemical oxidants; Disinfection by-products

1. Introduction

The importance of direct recycling of sewage for sustainable water resources management is commonly acknowledged [1]. In the decentralized field, this reuse would lead to the establishment of a secondary loop for different possible applications (e.g. for sanitary facilities). Secondary effluents after biological treatment still contain a multitude of pathogenic germs (e.g. faecal bacteria, protozoa, viruses, worm eggs, etc.) [2]. Hence, a disinfection prior to direct reuse is

indispensable and stipulated in country-specific codes and legal regulations [3].

The disinfection processes employed in the centralized large-scale water treatment such as chlorination and ozonization exhibit decisive drawbacks in the decentralized field (e.g. system safety, necessity for chemical storage and formation of unwanted disinfection by-products). As regards the introduction of a particular disinfection method for smaller systems, various factors such as acquisition cost, operating safety, compactness and simple, low-maintenance operation are of outstanding significance. Membrane filtration methods [4,5] and UV irradiation [6–8] represent useful options in small-scale wastewater (WW)

*Corresponding author.

disinfection; however, their current application requires a lot of investment in maintenance and costs. Therefore, electrochemical disinfection could be a promising alternative for the local internal recycling of biologically treated (domestic) effluents. The main advantage of an electrochemical method in contrast to membrane filtration and UV irradiation is the maintenance of disinfection residuals (depot effect) due to the generated oxidizing species, which facilitates the storage of reclaimed water. Further potential key benefits could be the high disinfection performance for a wide variety of micro-organisms [9,10], no necessity for storage of chemicals, on-site generation of electrochemical oxidants only if necessary, higher tolerance in terms of fluctuating water quality parameters and the fact that it is easy to perform by a simple, space-saving and low-maintenance integration in existing small sewage systems. Most of the published studies in the field of electrochemical disinfection have focused on drinking water treatment and were often performed with model solutions [11]. The electrodes applied therefore are mostly dimension-stable anodes (DSA) that are coated with mixed oxides (MOX) [12]. In model waters containing chloride, MOX electrodes demonstrate a high-production rate of the strong germicide “free chlorine”. Their application in real waters, however, is possible only in a limited scope, since deposits of calcium carbonate and magnesium hydroxide occur on the cathode as a consequence of local pH value increases. The easiest and the most efficient method to prevent this disturbing effect consists in polarity reversal. However, this polarity reversal drastically reduces the durability of the conventional DSA materials [13].

Novel boron-doped diamond electrodes (BDD electrodes) exhibit a high durability against periodic polarity reversals. Furthermore, such BDD electrodes possess an extraordinarily high electrochemical, mechanical and thermal stability [14,15]. Thus, short-lived germicides such as the free radicals $\cdot\text{OH}$, $\cdot\text{O}_2^-$ or $\cdot\text{OOH}$ [16] and more stable germicides, e.g. Cl_2 , ClO^- , HClO , O_3 , H_2O_2 , or $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$, can be produced electrochemically [17]. In chloride-containing waters, the formation mechanism of free chlorine at the BDD electrode is characterized by an indirect oxidation of the chloride ions [18]. Our previous studies have demonstrated that the implementation of disinfection with the BDD electrodes in biologically treated sewage is largely based on the dominant effect of electrochemically generated chlorine [19]. Moreover, the obtained results substantiate the fact that continuous bulk disinfection with subsequent after-reaction of the germicides with bacteria promises the highest degree of effectiveness.

Since it is known that free chlorine can react with organic material to form chlorinated organic compounds on the one hand and can be oxidized to chlorite, chlorate and perchlorate on the other, the formation of such unwanted disinfection by-products (DBPs) has to be investigated prior to each application of this technology [20,21]. The formation of adsorbable organically bound halogens (AOX) was proven in our previous studies [19].

The objective of the present study was to determine the influence of operating conditions such as current density, flow rate and parameters specific to WW like dissolved organic carbon (DOC), pH value and temperature on electrochemical disinfection of biologically treated sewage by using the technical set-up delineated. Furthermore, the formation of DBPs was examined.

2. Materials and methods

2.1. Reagents and chemical analyses

All chemicals used were of reagent grade and could be applied without further purification.

Photometric determination of free chlorine was carried out by means of the *N,N*-diethyl-*p*-phenylenediamine (DPD) method (EN ISO 7393-2) utilizing a UV/VIS Photometer (Unicam Co., England).

The DOC concentration was measured with the device TOC-5000 (Shimadzu, Japan). The determination of the sum parameter AOX was carried out using the device TOX-10 Σ (Abimed, Germany). Anion concentrations were measured by an ion chromatograph DX 500 (DIONEX Co., USA) equipped with a conductivity detector and an IonPac AS 19 column (2 \times 250 mm, eluent 20 mM KOH, flow rate 0.25 mL min⁻¹).

The trihalomethanes (THMs) were quantified by GC/MS (Thermo Scientific, USA).

The standard deviations of the analytical methods applied were found to be 4.5% for the DPD method (free chlorine), 5% for the determination of DOC, 10% for the anion analyses (e.g. chloride, etc.) by ion chromatography, 8% for the determination of THMs by GC/MS and 15% for the determination of AOX.

The temperature was measured with a digital thermometer GTH 175/Pt (Greisinger Co., Germany). The pH value was measured with the pH meter 761 Calimatic (Knick Co., Germany).

2.2. Preparation, assay and inactivation kinetics of coliforms (*Escherichia coli*)

In order to realize a stable initial concentration of the germs in each assay, it was essential to breed

coliform germs from the sewage and wastewaters used in the experiments were spiked with them. The proportion of *E. coli* within the total of coliforms amounted to ca. 50%.

To this end, 0.1 mL of a fresh sewage sample (WW treatment plant, Dresden, Germany) was spread on selective agar for coliform germs (MacConkey Agar, Merck, Germany) and incubated for 20 h at 37°C. Some colonies were collected through an inoculating loop and inserted in a nutrient solution consisting of pancreatic peptone and meat (SIFIN, Germany). This solution was kept for 5 h in an incubator at 37°C. The test culture thus created was mixed with glycerin, filled in Greiner tubes and stored at –70°C. The working culture was cultivated by adding 1 mL of the test culture to 50 mL of the nutrient broth and incubating it for 3 h at 37°C. Thereafter, 0.1 mL of this solution was spread on an agar plate and grown to a bacterial layer at 36°C for 24 h (DEV nutrient agar). The grown layer was then washed with a 5 mL solution prepared with 8.5 g NaCl and 20 mL phosphate buffer (pH=7.3). This final suspension had a durability of 7 days and contained from 1 to 10×10^9 CFU mL⁻¹. This bacteria concentrate was spiked to WW to get an initial concentration of approximately 10^5 *E. coli* 100 mL⁻¹.

The quantitative determination of *E. coli* was conducted by means of the Colilert-18/Quanti-Tray procedure (IDEXX Laboratories, Inc., USA). The level of inactivation was expressed as a log reduction of the ratio N/N_0 , where N is the number of germs after disinfection and N_0 is the initial number of germs. Triplicate measurements of the disinfection experiments exhibited good reproducibility of the microbiological method within a 95% confidence interval.

2.3. Experimental procedures

All of the electrochemical experiments were performed under galvanostatic conditions using an undivided flow-through cell, into which four latticed BDD electrodes (BDD layer on niobium substrate, Condias GmbH, Germany) were integrated (Fig. 1). These electrodes were used as cathodes and anodes with an effective overall surface area ($A_{\text{Anode}} = A_{\text{cathode}}$) of 54 cm². The volume of the flow-through electrolysis cell (2) was 120 mL, whereas the volume of the reservoir (1) and the collection receptacle (5) was of 10 L. The WW was set to the desired temperature by means of a thermostat.

For disinfection experiments, the WW was taken from a municipal sewage treatment plant in Dresden. Selected chemical parameters of these WWs are summa-

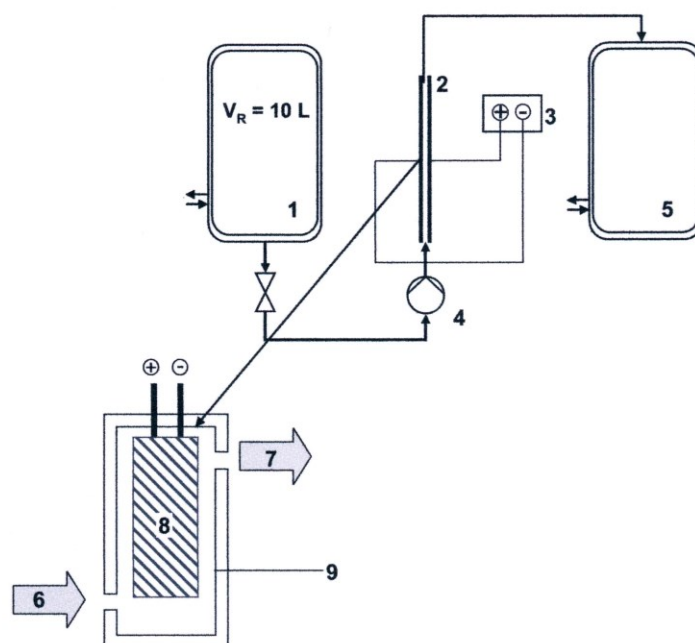


Fig. 1. Experimental set-up: 1, reservoir ($V_R = 10$ L); 2, flow-through electrolysis cell; 3, power supply; 4, pump; 5, collection receptacle; 6, inlet; 7, outlet; 8, BDD electrodes ($A_{\text{Anode}} = 54$ cm²); 9, volume of the electrolysis cell ($V_{\text{Cell}} = 0.12$ L).

Table 1
Chemical parameters of the applied secondary effluents

Chemical parameter	WW 1	WW 2	WW 3	WW 4
κ in μScm^{-1}	1,293	1,151	964	916
pH	7.3	7.0	7.3	7.1
DOC in mg L^{-1}	8.3	13.5	21.8	9.2
β (Cl^-) in mg L^{-1}	173	173	132	129
β (Br^-) in mg L^{-1}	nd	nd	nd	nd
β (SO_4^{2-}) in mg L^{-1}	167	144	136	142
β (NO_2^-) in mg L^{-1}	nd	0.7	4.2	2.4
β (NO_3^-) in mg L^{-1}	42	29.5	13.9	38.1
β (PO_4^{3-}) in mg L^{-1}	nd	nd	nd	nd
β (free chlorine) in mg L^{-1}	nd	nd	nd	nd
β (ClO_2^-) in mg L^{-1}	nm	nm	nd	nd
β (ClO_3^-) in mg L^{-1}	nm	nm	nd	nd
β (BrO_3^-) in mg L^{-1}	nm	nm	nd	nd
β (ClO_4^-) in mg L^{-1}	nm	nm	nd	nd
β (BrO_4^-) in mg L^{-1}	nm	nm	nd	nd
β (NH_4^+) in mg L^{-1}	nd	nd	nd	nd
AOX in $\mu\text{g L}^{-1}$	22	27	20	30
β (TCM) in $\mu\text{g L}^{-1}$	nm	nm	0.1	0.1
β (BrDCM) in $\mu\text{g L}^{-1}$	nm	nm	nd	nd
β (DBrCM) in $\mu\text{g L}^{-1}$	nm	nm	nd	nd
β (TBrM) in $\mu\text{g L}^{-1}$	nm	nm	nd	nd
β_{total} (THMs) in $\mu\text{g L}^{-1}$	nm	nm	0.1	0.1

Note: nm, not measured; nd, not detectable; TCM, Trichloromethane; BrDCM, Bromodichloromethane; DBrCM, Dibromochloromethane; TBrM, Tribromomethane; THMs, Trihalomethanes.

rized in Table 1 that shows a typical composition of biologically treated WWs.

Within a series of experiments, the same charge was used for the respective inspection of a certain survey parameter.

The applied operation mode of the disinfection process combines the continuous addition of electrochemically generated disinfectants with subsequent after-reaction in batch mode (Fig. 1). Six litres of the WW was channelled via the flow-through electrolysis cell (2) into a collection receptacle (5). After 5 L had passed through the electrochemical cell, the sampling was directly conducted in the effluent of the electrolysis cell. Different residence times of the electrochemically created germicides of 0, 5, 10, 15 and 20 min were realized. These residence times were set in all experiments, except while investigating the influence of the pH value. With a view to studying the influence of pH on disinfection, residence times of 0, 4, 6 and 12 min were selected. The concentration of free chlorine was immediately determined at the given time point. A $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ solution (1.5 g L^{-1}) was added to quench the oxidants in each microbiological subsample.

To determine the influence of current density and flow rate on the production rate of free chlorine, current densities (j) of 15, 30, 45, 60, 75, 90 and 105 mA cm^{-2} and flow rates (\dot{V}) of 25, 50, 75, 100 and 125 L h^{-1} were applied to WW 1.

The influence of sewage-specific parameters such as temperature, pH value and DOC on the disinfection capacity was studied according to the respective chloride concentrations of sewage at current densities of 83, 148 and 167 mA cm^{-2} and at a flow rate of 60 L h^{-1} .

The influence of temperature on electrochemical disinfection efficiency was studied at 6, 20 and 30°C (WW 2).

The investigation of the pH dependence of the electrochemical disinfection was carried out at $\text{pH}=5.7$, 7.6 and 8.5 (WW 2). These values were adjusted with sulphuric acid (1 mol L^{-1}) or sodium hydroxide (1 mol L^{-1}), respectively, and remained constant during electrolysis.

The influence of dissolved organic compounds of the WW on the disinfection efficiency was determined at DOC concentrations of 9 and 22 mg L^{-1} (WW 3, WW 4).

Samples for the determination of the DBPs were taken after the electrochemical treatment of WW 3 and WW 4 at $j = 167 \text{ mA cm}^{-2}$ and $\dot{V} = 60 \text{ L h}^{-1}$.

3. Results and discussion

3.1. Influence of operating conditions (current density and flow rate) on the production rate of free chlorine

Due to the high concentration of chloride in WW 1–WW 4, free chlorine is the main oxidant/germicide (other secondary oxidants such as ozone and hydrogen peroxide could not be detected) [19]. Thus, the production rate of free chlorine under various operating conditions (current density and flow rate) was examined.

It became apparent that the production rate of free chlorine (concentration of free chlorine normalized to the electric charge input) is independent of the flow rate ($25\text{--}125 \text{ L h}^{-1}$) within the range of applied current densities ($15\text{--}105 \text{ mA cm}^{-2}$) (Fig. 2). Consequently, the influence of mass transport on the production rate of free chlorine is marginal.

3.2. Influence of wastewater-specific parameters on the *E. coli* inactivation efficiency

3.2.1. Influence of temperature

It could be observed that the disinfection time is considerably reduced as the temperature rises (Fig. 3).

At a temperature of 30°C , the limiting value of 100 faecal coliforms (mainly *E. coli*) per 100 mL sewage was already undercut after a residence time of $< 5 \text{ min}$. At 6°C , this limiting value was not reached even after a 20-min residence time. Merely a reduction of *E. coli* one log level down was achieved.

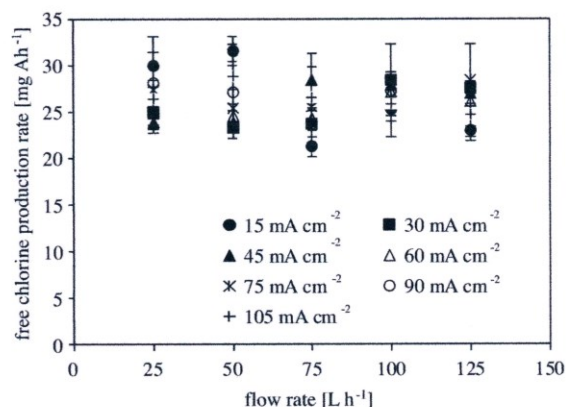


Fig. 2. Production rate of free chlorine in dependence on flow rate and current density (WW 1, $T = 20^\circ\text{C}$).

The *E. coli* reduction depending on the temperature can moreover be characterized with the so-called CT value (concentration \times residence time). It takes into account the germicide concentration (e.g. free chlorine) averaged over time as well as the effect of the disinfectant residence time on the germs. For this reason, the CT value is often applied to assess the effectiveness of certain disinfectants on different micro-organisms [22]. Furthermore, this parameter depends on several factors such as pH value, temperature and micro-organisms' species.

At an *E. coli* reduction of one log level, the average CT value at 20°C is ca. 3 mg min L^{-1} , at 6°C , however, it is 7 mg min L^{-1} . For a bacterial count reduction of five log levels, the average CT value at a temperature of 20°C with 6 mg min L^{-1} accounts for more than thrice the CT value at 30°C (2 mg min L^{-1}). It becomes apparent that the CT value shrinks at rising temperature thus increasing the effectiveness of free chlorine and consequently augmenting the disinfection capacity.

To explain the strong temperature dependence of the electrochemical disinfection of sewage, chemical and biological aspects have to be considered. The fact that germs show a better metabolic activity at higher temperatures than at lower temperatures is well established. At low temperatures, the free chlorine can penetrate the bacteria only in a complicated fashion, or, to put it differently, it can only unfold its effect very restrictedly. Consequently, the disinfection time is considerably longer than at high temperatures.

Moreover, it was examined to what extent the fraction of the potent germicide HClO , as part of the free chlorine, changes at high and low temperatures. This fraction could furthermore represent a decisive indication of the temperature dependence of the disin-

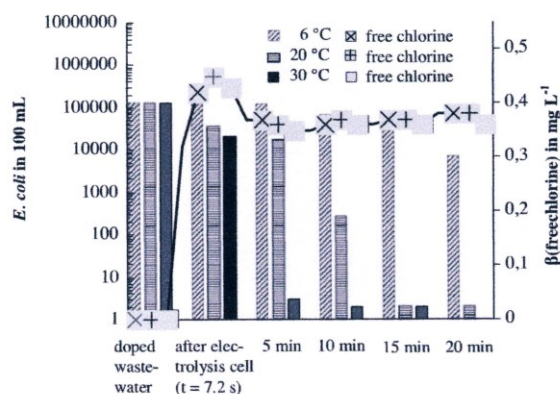


Fig. 3. *E. coli* inactivation and formation of free chlorine in dependence on temperature (WW 2, $\dot{V} = 60 \text{ L h}^{-1}$, $j = 83 \text{ mA cm}^{-2}$, $T = 6, 20, 30^\circ\text{C}$, residence time = 5, 10, 15, 20 min).

fection. To verify this hypothesis, the pK_a values of HClO were compared for temperatures of 6, 20 and 30°C . A negligibly small alteration ($pK_a(6^\circ\text{C})=7.74$, $pK_a(20^\circ\text{C})=7.58$, $pK_a(30^\circ\text{C})=7.50$) was discerned [23]. Consequently, the different disinfection periods cannot be explained by an altered composition of the free chlorine at varying temperatures.

3.2.2. Influence of pH

The pH were set to values that represent weakly acidic as well as weakly basic conditions (pH=5.7, 7.6, 8.5). With an increasing pH value, the disinfection of WW is retarded (Fig. 4).

In an acidic medium, an *E. coli* reduction of four log levels is attained after a residence time of 4 min, whereas in a weakly basic environment (pH=7.6) the same result is achieved only after 12 min. Thus, the residence time and the resulting CT value (7 mg min L^{-1}) are three times higher under basic than under acidic conditions (2.4 mg min L^{-1}). In another elevation of the pH value to 8.5, an *E. coli* reduction of solely 2.6 log levels is observed after 12 min. For all tested pH environments, the concentration of free chlorine was constant (0.6 mg L^{-1}). At a given total concentration of free chlorine, the ratio of HClO to ClO^- depends on the pH according to the acid/base equilibrium. It is well known that the germicidal effect of hypochlorous acid is 80 times greater than that of hypochlorite [24]. Therefore, the pH-dependent change in the free chlorine composition has to be considered in order to interpret the observed results. The pK_a value of the hypochlorous acid equals 7.5 ($T=20^\circ\text{C}$). Hence, the disinfection periods, and thus the CT values, are smaller in an acidic environment than in a basic environment.

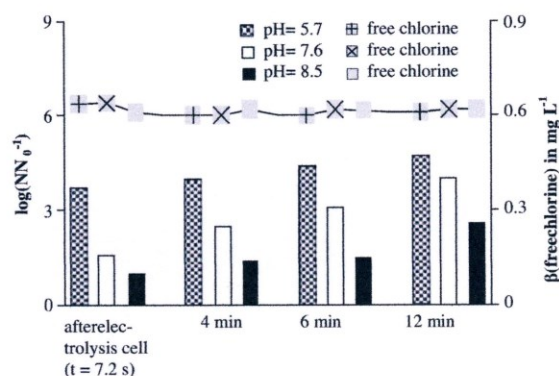


Fig. 4. Inactivation of *E. coli* and formation of free chlorine in dependence on pH (WW 2, $\dot{V}=60\text{ L h}^{-1}$, $j=148\text{ mA cm}^{-2}$, $T=20^\circ\text{C}$, residence time = 4, 6, 12 min).

3.2.3. Influence of DOC

The applied sewage contains dissolved organic compounds reacting with free chlorine. This fact becomes apparent in comparison of the production of free chlorine at varying DOC values (Fig. 5).

As a result of an increasing DOC level from 9 to 22 mg L^{-1} , the concentration of free chlorine decreases by 72%. The effectiveness of the electrochemical disinfection is thereby reduced. At a DOC concentration of 22 mg L^{-1} , only a 1.7 log reduction was observed after a residence time of 15 min. At a DOC concentration of 9 mg L^{-1} , however, a four log reduction was attained due to a higher concentration of free chlorine. Consequently, the DOC level constitutes a decisive influencing factor for the disinfection of sewage.

3.3. By-product formation during the disinfection process

Because of the demonstrated dominant role of chlorine species in the electrochemical WW disinfection process, the control of organic and inorganic by-product formation is of great concern.

After the electrochemical treatment (WW 3 and WW 4, $j=167\text{ mA cm}^{-2}$, $\dot{V}=60\text{ L h}^{-1}$, residence time = 20 min) chlorite was not detectable. It is a short-lived component that could be indirectly oxidized by, for example, hydroxyl radicals or directly oxidized at the anode via chlorate to perchlorate [20]. The concentration of chlorate was 1.3 mg L^{-1} whereas that of perchlorate reached 18 mg L^{-1} .

Currently, there are no regulated thresholds for chlorite, chlorate and perchlorate in reclaimed WW. However, the WHO [25] recommends guideline values of 0.7 mg L^{-1} for chlorite as well as for chlorate in drinking water. For perchlorate, the US-EPA specifies

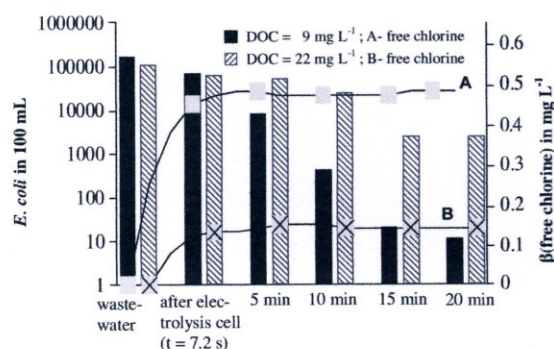


Fig. 5. Inactivation of *E. coli* and formation of free chlorine in dependence on DOC (WW 3, WW 4, $\dot{V}=60\text{ L h}^{-1}$, $j=167\text{ mA cm}^{-2}$, $T=20^\circ\text{C}$, residence time = 5, 10, 15, 20 min).

a reference dose of $0.0007 \text{ mg kg}^{-1} \text{ d}^{-1}$, which equates to a drinking water equivalent level of $24.5 \mu\text{g L}^{-1}$ [26]. The formation of chlorate and perchlorate is critical due to their toxic effects on human beings (haemolytic anaemia, thyroid dysfunction). Furthermore, bromate and perbromate could not be detected.

The total concentration of the THMs ($1.2 \mu\text{g L}^{-1}$) was negligible and even significantly lower than the threshold of $80 \mu\text{g L}^{-1}$ being defined in international drinking water regulations [27].

The AOX value of the biologically treated sewage without disinfection was $20\text{--}30 \mu\text{g L}^{-1}$. The application of the electrochemical disinfection yields a quadruplication or quintuplication of the AOX concentration ($100\text{--}127 \mu\text{g L}^{-1}$), which originates predominantly from the chemical reactions of the electrochemically produced free chlorine with the organic compounds of the sewage.

4. Conclusions

The results of this study have shown that the efficiency of electrochemical disinfection with BDD electrodes is mainly influenced by the concentration of the formed free chlorine. The production rate of free chlorine at flow rates within the range of $25\text{--}125 \text{ L h}^{-1}$ varies between ca. 24 and 30 mg (Ah)^{-1} . These results indicate a marginal influence of the mass transport on the production rate of free chlorine.

The disinfection capacity is substantially influenced by the WW-specific parameters such as temperature, pH and DOC. The disinfection effect of free chlorine improves considerably within the studied temperature range of $6\text{--}30^\circ\text{C}$. For a germ count reduction by one log level, the average CT value, which characterizes the efficiency of germicides, is ca. 7 mg min L^{-1} at 6°C . This value declines by ca. 50% (3 mg min L^{-1}) at a temperature increase to 20°C , and by another 93% ($0.2 \text{ mg min L}^{-1}$) at 30°C .

Compared to sewage with a moderately acidic pH value of 5.7 (CT value of $2.4 \text{ mg min L}^{-1}$), the CT value (7 mg min L^{-1}) for a germ reduction by four log levels is elevated by a factor of 3 under weakly basic conditions ($\text{pH}=7.6$). With the increase of DOC from 9 to 22 mg L^{-1} , the concentration of free chlorine drops by 72% due to reactions with the competing dissolved organics of the sewage, which in turn results in a diminished disinfection capacity. Chlorine-consuming processes contribute to a rise in the AOX value to a maximum of $127 \mu\text{g L}^{-1}$. The total concentration of THMs ($1.2 \mu\text{g L}^{-1}$) was negligible. In contrast to this, the inorganic by-products, chlorate (1.3 mg L^{-1}) and perchlorate (18 mg L^{-1}), were formed in considerable concentrations.

Summarizing, the investigations have demonstrated that the electrochemical disinfection of *E. coli* in secondary effluents ($T>6^\circ\text{C}$, $\text{pH}<8.5$, $\text{DOC}<22 \text{ mg L}^{-1}$) proceeds effectively at an electric charge input of $0.1\text{--}0.15 \text{ Ah L}^{-1}$ corresponding to an energy expenditure of $2.0\text{--}2.6 \text{ kWh m}^{-3}$.

Nevertheless, a careful approach to the use of BDD electrodes in electrochemical disinfection is recommended due to the formation of chlorate and perchlorate. It is difficult to control or reduce the formation of chlorate and perchlorate regardless of the cell design. The specific electrochemical reactions at BDD electrodes—mainly based on radical mechanisms—lead to these undesired by-products. Only a reduced electric charge input can diminish the formation of chlorate and perchlorate on the one hand, but lowers the disinfection efficiency drastically on the other. As a result of this, the after-reaction time has to be increased. Furthermore, the potential for the generation of chlorate and perchlorate depends on the electrode material.

In experiments with MOX electrodes carried out by the authors (data not shown), a reduced formation of chlorate and no perchlorate could be observed at concentrations of free chlorine ranging from 0.4 to 0.6 mg L^{-1} . This is due to a different electrochemical mechanism compared to BDD electrodes (without ROS). Since processes of advanced oxidation are considered to be promising for environmental protection, more care has to be taken for studies on the analysis of by-products (e.g. chlorate, perchlorate).

Acknowledgement

The project was financially supported by the German Federation of Industrial Research Associations (AiF).

References

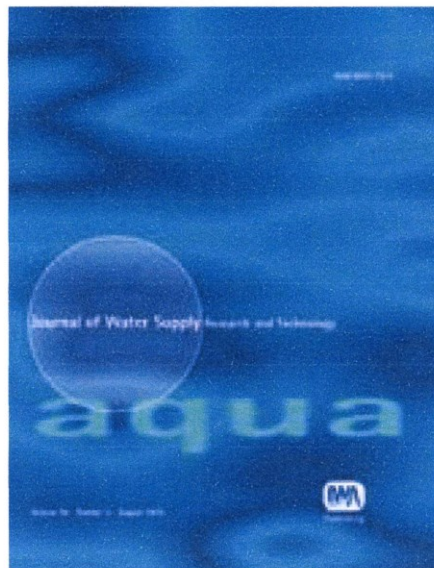
- [1] T. Asano, A.D. Levine, Wastewater reclamation, recycling and reuse: Past, present and future, *Water Sci. Technol.* 33 (1996) 1–14.
- [2] W. Popp, Disinfection of secondary effluents from sewage treatment plants—requirements and applications, *Eur. Wat. Man.* 1 (1998) 27–31.
- [3] US-Environmental Protection Agency, Guidelines for water reuse, EPA/625/R-04/108, 2004.
- [4] V. Lazarova, P. Savoye, M.L. Janex, E.R. Blatchley, III, M. Pommepuy, Advanced wastewater disinfection technologies: State of the art and perspectives, *Water Sci. Technol.* 40 (1999) 203–213.
- [5] B. Jefferson, A.L. Laine, T. Stephenson, S.J. Judd, Advanced biological unit processes for domestic water recycling, *Water Sci. Technol.* 43 (2001) 211–218.
- [6] A. Bourrouet, J. Garcia, R. Mujeriego, G. Penuelas, Faecal bacteria and bacteriophage inactivation in a full scale UV disinfection system used for wastewater reclamation, *Water Sci. Technol.* 43 (2001) 187–194.

- [7] R.L. Rajala, M. Pulkkanen, M. Pessi, H. Heinonen-Tanski, Removal of microbes from municipal wastewater effluent by rapid sand filtration and subsequent UV irradiation, *Water Sci. Technol.* 47 (2006) 157–162.
- [8] S. Evcimen, A. Kerc, Application of UV disinfection in municipal wastewater treatment plants for agricultural use of reclaimed wastewater in Turkey, *DWT* 26 (2011) 39–44.
- [9] J. Gutknecht, F. Hartmann, N. Kirmair, A. Reis, M. Schoeberl, Anodic oxidation as a water disinfecting process in food plants and breweries, *GIT Fachz. Lab.* 25 (1981) 472–481.
- [10] G.E. Stoner, G.L. Cahen, M. Sachyani, E. Gileadi, The mechanism of low frequency A. C. electrochemical disinfection, *Bioelectrochem. Bioenerg.* 9 (1982) 229–243.
- [11] C.A. Martinez-Huitle, E. Brillas, Electrochemical alternatives for drinking water disinfection, *Angew. Chem.* 47 (2008) 1998–2005.
- [12] A. Kraft, M. Stadelmann, M. Blaschke, D. Kreysig, B. Sandt, F. Schröder, J. Rennau, Electrochemical water disinfection Part I: Hypochlorite production from very dilute chloride solutions, *J. Appl. Electrochem.* 29 (1999) 861–868.
- [13] A. Kraft, M. Blaschke, D. Kreysig, B. Sandt, F. Schröder, J. Rennau, Electrochemical water disinfection Part II: Hypochlorite production from potable water, chlorine consumption and the problem of calcareous deposits, *J. Appl. Electrochem.* 29 (1999) 895–902.
- [14] M. Fryda, L. Schäfer, I. Tröster, Doped diamond—a new material for industrial electrochemistry, *Recent Res. Dev. Electrochem.* 4 (2001) 85–97.
- [15] T. Furuta, Ph. Rychen, H. Tanaka, L. Pupunat, W. Haenni, Y. Nishiki, Legionella inactivation with diamond electrodes, *Diamond Relat. Mater.* 13 (2004) 2016–2019.
- [16] J. Jeong, J.Y. Kim, J. Yoon, The role of reactive oxygen species in the electrochemical inactivation of microorganisms, *Environ. Sci. Technol.* 40 (2006) 6117–6122.
- [17] T. Furuta, Ph. Rychen, H. Tanaka, L. Pupunat, W. Haenni, Y. Nishiki, Application of diamond electrodes for water disinfection, in: A. Fujishima, Y. Einaga, T.N. Rao, D.A. Tryk, (Eds.), *Diamond Electrochemistry*, Elsevier, Tokyo, 2005, pp. 525–542.
- [18] J. Jeong, Ch. Kim, J. Yoon, The effect of electrode material on the generation of oxidants and microbial inactivation in the electrochemical disinfection processes, *Water Res.* 43 (2009) 895–901.
- [19] V. Schmalz, T. Dittmar, D. Haaken, E. Worch, Electrochemical disinfection of biologically treated local sewage by using boron doped diamond (BDD) electrodes—contribution for direct reuse of domestic wastewater, *Water Res.* 43 (2009) 5260–5266.
- [20] M.E.H. Bergmann, J. Rollin, Product and by-product formation in laboratory studies on disinfection electrolysis of water using boron-doped diamond anodes, *Catal. Today* 124 (2007) 198–203.
- [21] S. Palmas, A.M. Polcaro, A. Vacca, M. Mascia, F. Ferrara, Influence of the operating conditions on the electrochemical disinfection process of natural waters at BDD electrodes, *J. Appl. Electrochem.* 37 (2007) 1357–1365.
- [22] G.C. White, *The Handbook of Chlorination and Alternative Disinfections*, third ed. Van Nostrand Reinhold, New York, NY, 1992.
- [23] J.C. Morris, The acid ionization constant of HOCl from 5 to 35, *J. Phys. Chem.* 70 (1966) 3798–3805.
- [24] W. Nazaroff, L. Alvarez-Cohen, *Environmental Engineering Science*, Wiley, New York, NY, 2001.
- [25] World Health Organisation (WHO), *Guidelines for Drinking Water Quality, Incorporating the 1st and 2nd Addenda, Recommendations*, third ed. Geneva, 2008.
- [26] US-Environmental Protection Agency, *Perchlorate treatment technology update*, EPA 542-R-05-015, 2005.
- [27] US-Environmental Protection Agency, *Alternative disinfectants and oxidants*, EPA/815/R-99/014, 1999.

3.2 Limits of UV disinfection: UV/electrolysis hybrid technology as a promising alternative for direct reuse of biologically treated wastewater

Die Untersuchungen wurden innerhalb des Kooperationsprojektes „Entwicklung eines Moduls zur Desinfektion von Kleinkläranlagenabläufen auf Grundlage der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik zur Gewinnung von Brauchwasser“ durchgeführt. Der Antrag zum Teilprojekt „Prozessuntersuchungen zur Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser unter Nutzung der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik“ wurde von mir angefertigt. Das Projekt wurde durch den Europäischen Fond für regionale Entwicklung und den Freistaat Sachsen finanziell unterstützt sowie in Kooperation mit der Firma Bergmann Clean Abwassertechnik GmbH durchgeführt.

**Provided for non-commercial research and educational use only.
Not for reproduction or distribution or commercial use.**



This article was originally published by IWA Publishing. IWA Publishing recognizes the retention of the right by the author(s) to photocopy or make single electronic copies of the paper for their own personal use, including for their own classroom use, or the personal use of colleagues, provided the copies are not offered for sale and are not distributed in a systematic way outside of their employing institution.

Please note that you are not permitted to post the IWA Publishing PDF version of your paper on your own website or your institution's website or repository.

Please direct any queries regarding use or permissions to aqua@iwap.co.uk

Limits of UV disinfection: UV/electrolysis hybrid technology as a promising alternative for direct reuse of biologically treated wastewater

Daniela Haaken, Viktor Schmalz, Thomas Dittmar and Eckhard Worch

ABSTRACT

Although UV irradiation represents an energy efficient disinfection method, bacterial regrowth in UV irradiated secondary effluents is a serious problem for their direct reuse (e.g., for domestic or irrigation purposes). The decrease of the lethal UV fluence caused by coverings (scaling and biofouling) on quartz sleeves of UV lamps and/or fluctuating specific water parameters (suspended solids, transmittance or turbidity) results in a reversible inactivation of faecal coliforms (*Escherichia coli*). The reactivation of *E. coli* is increased with rising light intensity (≥ 470 Lux) and rising temperature (≥ 20 °C). The supplementation of UV disinfection with an electrolysis compartment ensures a reliable, sustained bacterial reduction and prevents reactivation of *E. coli* in UV irradiated ($H = 138\text{--}140 \text{ J m}^{-2}$) wastewater at a concentration of total oxidants of 0.5 mg L^{-1} . The electric charge input of 0.012 Ah L^{-1} was lowest on MOX (mixed oxide) electrodes compared to particle BDD (boron-doped diamond) and thin film BDD electrodes. The formation of organic by-products (adsorbable organically bound halogens, trihalomethanes) ranged from marginal to moderate. In contrast to BDD electrodes, no chlorite, chlorate and perchlorate were observed on MOX electrodes. The energy consumption of the UV/electrolysis hybrid reactor was 0.17 kWh m^{-3} .

Key words | bacterial regrowth, disinfection, disinfection by-products, UV/electrolysis hybrid technology, wastewater reuse

Daniela Haaken
Viktor Schmalz
Thomas Dittmar (corresponding author)
Eckhard Worch
Dresden University of Technology, Institute of
Water Chemistry,
01062 Dresden,
Germany
E-mail: Thomas.Dittmar@tu-dresden.de

INTRODUCTION

According to estimates of the United Nations Environment Programme (UNEP), in 2025 more than 1.8 billion people will be directly affected by the consequences of acute water shortage (water stress) (UNEP 2007).

Wastewater represents a valuable resource as regards its occurrence and composition. Thus, wastewater treatment and reuse are essential particularly in the newly industrializing and developing countries of the semiarid and arid climate zones. Over 90% of the annual water consumption is used for the irrigation of agricultural land to ensure the nutrition of the population (Cornel & Weber 2006).

Activities in the field of wastewater management are particularly beginning to focus on decentralized wastewater treatment. Innovative local wastewater management can be defined as the collection, treatment and direct reuse of water

from individual homes, clusters of homes or isolated communities and industries (Tchobanoglous & Angelakis 1996). Direct recycling provides the possibility to enhance the efficiency of water usage.

The direct usage of biologically treated wastewater is excluded due to the infectious risk caused by a multitude of pathogens (bacteria, viruses, worms, protozoa) (Popp 1998; Costán-Longares *et al.* 2008). A satisfactory reduction of pathogens can be attained by the application of specific disinfection methods.

Practical experience, partly with semi-industrial facilities, as well as economic and environmental reasons, lead to the conclusion that only a small number of conventional chemical disinfection methods applied in drinking water treatment are also suitable for advanced wastewater

treatment. In particular, the well-established disinfection procedures in central water treatment, such as chlorination and ozonation, suffer from decisive disadvantages, e.g., a necessity for the storage of toxic, polluting, partly explosive and oxidizing chemicals, the need of a substantial compliance of safety standards which requires complex control, measuring and monitoring equipment, as well as the formation of undesirable, partly carcinogenic disinfection by-products, e.g., trihalomethanes, haloacetic acids, haloacetonitriles, haloketones, chlorite, chlorate, etc., caused by chlorination processes (Koukouraki & Diamadopoulos 2002; Singer *et al.* 2002), and aldehydes, keto acids, hydroxy acids, esters, bromoorganics, bromate, etc., caused by ozonation processes (von Gunten 2003).

UV irradiation is an established and increasingly popular alternative to chemical disinfection of drinking water, domestic wastewater and industrial wastewater (Whitby *et al.* 1984; USEPA 1986, 1996, 1999; White *et al.* 1986; Kruithof *et al.* 1992; Hijnen *et al.* 2006; Antonelli *et al.* 2008).

However, unfavourable effects are the high potential for bacterial regrowth caused by the lack of a residual disinfectant as well as a diminished UV fluence. This diminished UV fluence results from, among other things, fluctuating specific water parameters, such as turbidity, total suspended solids (TSS), etc., and from coverings (biofouling, scaling) on the quartz sleeves of UV lamps which shorten the UV reactors' long-term operation significantly (Jesien 1998; Lin *et al.* 1999a, b; Sheriff & Gehr 2001). Furthermore, a reduced UV fluence leads to a reversible inactivation of faecal coliforms (*Escherichia coli*). They are reactivated by photo and dark repair mechanisms (Lindenauer & Darby 1994; Oguma *et al.* 2001; Zimmer & Slawson 2002; Queck & Hu 2008). As a result, this disinfection technology is of limited applicability for wastewater reclamation. However, UV irradiation represents a disinfection method that can be combined well with other disinfection procedures such as electrolysis. Bergmann *et al.* (2002) also proclaim this fact as promising and they motivate scientists for further specific research.

In the 1970s and 1980s, Reis and Kirmaier described technical applications of the electrochemical disinfection having, however, been shifted into the background due to lengthy problems with the electrodes' operability (Reis 1976; Reis & Henninger 1957; Kirmaier *et al.* 1984). Only in recent years have scientists succeeded in eliminating the technical

problems by conducting extensive development work on this method. Most of the published studies in the field of electrochemical disinfection have focused on drinking water treatment and were often done with model solutions (Martinez-Huitle & Brillas 2008). The electrodes applied therefore are mostly dimensionally stable anodes being coated with mixed oxides (MOX) (Kraft 1999; Kraft *et al.* 1999a, b, 2003; Kraft 2008) or boron doped diamond (BDD) electrodes (Kraft *et al.* 2000, 2003; Kraft 2008; Haenni *et al.* 2001; Furuta *et al.* 2004, 2005; Panizza & Cerisola 2005). Electrochemical disinfection is largely based on the dominant effect of electrochemically generated free chlorine (Schmalz *et al.* 2009). Continuous bulk disinfection with a subsequent reaction time of the germicides promises the highest degree of effectiveness (Haaken *et al.* 2012). However, current studies on electrochemical disinfection of biologically treated wastewater at BDD electrodes show that a number of disadvantages are inherent to this method. Thus, it was observed that temperature, pH value and dissolved organic carbon (DOC) concentration strongly affect the disinfection capacity. Low temperatures (6 °C), raised pH values (>8.5) and increased DOC concentrations (>22 mg L⁻¹) hamper the electrochemical disinfection and require higher concentrations of free chlorine or longer disinfection periods. However, this measure is limited by the formation of undesirable disinfection by-products, such as adsorbable organically bound halogens (AOX), chlorate and perchlorate (Haaken *et al.* 2012). Hence, the application of the electrochemical disinfection of biologically treated wastewater is possible only to a limited extent.

The UV/electrolysis hybrid technology as an innovative combined method might compensate the disadvantages of the single procedures due to the synergistic effect of UV irradiation and electrolysis.

Against this background, the potential eligibility of the UV/electrolysis hybrid technology for wastewater reclamation was investigated. The UV disinfection represents the primary disinfection method within the hybrid reactor. The additional electrochemical treatment of the UV irradiated wastewater should ensure a disinfection residual due to the formation of long-lived oxidizing germicides and thus suppress the reactivation mechanisms of faecal coliforms in reclaimed wastewater. Therefore, the extent of photo and dark repair of the indicator bacteria *E. coli* after UV irradiation under varying conditions (light intensity, pH,

temperature) and its prevention using UV/electrolysis hybrid technology were examined in the present study.

MATERIAL AND METHODS

Reagents and chemical analyses

All chemicals used were of reagent grade and could be applied without further purification.

Anion concentrations were measured by an ion chromatograph DX 500 (DIONEX Co., USA) equipped with a conductivity detector and an IonPac AS 19 column (2×250 mm, eluent 20 mM KOH, flow rate 0.25 mL min^{-1}). The DOC concentration was measured with the device TOC-5000 (Shimadzu, Japan). The determination of the sum parameter AOX was carried out using the device TOX-10 Σ (Abimed, Germany).

The photometric determination of free chlorine and total oxidants was carried out by means of *N,N*-diethyl-*p*-phenylene diamine (DPD) method (EN ISO 7393-2) utilizing a UV/VIS Photometer (Unicam Co., UK).

The trihalomethanes (THMs) were quantified by gas chromatography–mass spectrometry (GC/MS) (Thermo Scientific, USA).

The standard deviations of the analytical methods applied were found to be 4.5% for the DPD method (free chlorine), 5% for the determination of DOC, 10% for the anion analyses (e.g., chloride, etc.) by ion chromatography, 8% for the determination of THMs by GC/MS and 15% for the determination of AOX.

Preparation of the coliform (*E. coli*) stock suspension and spiking of biologically treated wastewater

In order to realize a stable initial bacterial concentration in each assay, it was essential to cultivate coliforms from the sewage and then spike the water with them. The proportion of *E. coli* within the total of coliforms amounted to around 50%. To this end, 0.1 mL of a fresh sewage sample (wastewater treatment plant, Dresden, Germany) was spread on selective agar for coliform germs (MacConkey Agar, Merck, Germany) and incubated for 20 hours at 37°C . Some colonies were collected through an inoculating loop and inserted in a nutrient

solution consisting of pancreatic peptone and meat (SIFIN, Germany). This solution was kept for 5 h in an incubator at 37°C . The test culture thus created was mixed with glycerine, filled in Greiner tubes and stored at -70°C . The working culture was produced by adding 1 mL of the test culture to 50 mL of the nutrient broth and incubating it for 5 hours at 37°C . Thereafter, 0.1 mL of this solution was spread on an agar plate and grown to a bacterial layer at 36°C for 24 h (DEV nutrient agar). This layer was washed with a 5 mL solution prepared with 8.5 g NaCl and 20 mL phosphate buffer ($\text{pH} = 7.3$). This final suspension had a durability of 7 days and contained from 1 to $9 \times 10^9 \text{ CFU mL}^{-1}$. This bacteria concentrate was spiked to wastewater to get an initial concentration of approximately $1\text{--}3 \times 10^5 \text{ E. coli}$ in 100 mL.

The quantitative determination of the *E. coli* was conducted by means of the Colilert-18/Quanti-Tray procedure (IDEXX, USA).

Triplicate measurements of the disinfection and reactivation experiments exhibited a good reproducibility of the microbiological method within a 95% confidence interval.

Experimental procedures

The UV/electrolysis hybrid module was equipped with a UV flow reactor (UMEX GmbH, Germany) as well as an electrolysis flow cell (galvanostatic conditions) having been operated in continuous mode (Figure 1). A 20 W low pressure mercury UV lamp with a UVC efficiency of 32.9% and a sensor for measuring the UV irradiance were integrated into the UV flow reactor (length = 36 cm, inner radius = 1.9 cm, $V_{\text{irradiated}} = 0.27 \text{ L}$). The following electrode materials were components of the electrochemical disinfection unit:

- Thin film BDD on Nb substrate (Condias GmbH, Germany, $A_{\text{eff, anode}} = A_{\text{eff, cathode}} = 54 \text{ cm}^2$).
- Plastic based particle BDD (pro aqua Diamantelektroden Produktion GmbH, Germany, $A_{\text{eff, anode}} = A_{\text{eff, cathode}} = 100 \text{ cm}^2$).
- Ir/Ru mixed oxide on Ti substrate (De Nora GmbH, Germany, $A_{\text{eff, anode}} = A_{\text{eff, cathode}} = 301 \text{ cm}^2$).

Anode and cathode were made up of the same material. The reservoir and the collection receptacle had a volume of 10 L.

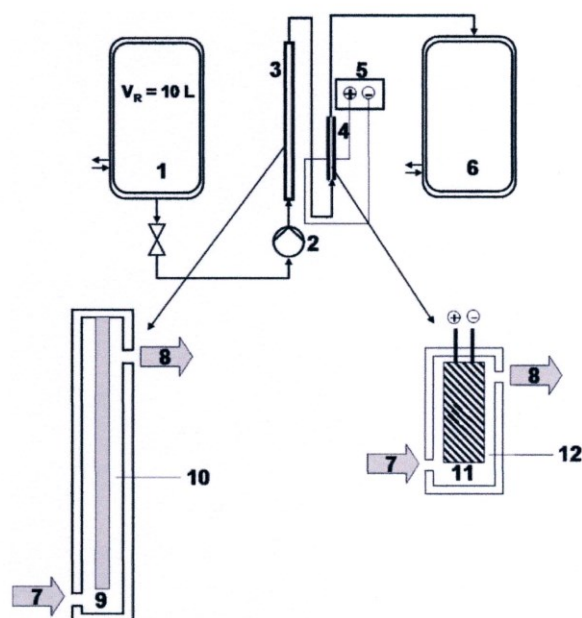


Figure 1 | Experimental set-up: 1 – reservoir ($V_R = 10$ L), 2 – pump, 3 – UV flow reactor, 4 – electrolysis flow cell, 5 – power supply, 6 – collection receptacle, 7 – inlet, 8 – outlet, 9 – low pressure mercury UV lamp (20 W), 10 – UV irradiated volume ($V = 0.27$ L), 11 – BDD or MOX electrodes ($A_{\text{eff, anode}} = A_{\text{eff, cathode}} = 54$ – 301 cm²), 12 – volume of the electrolysis cell ($V_{\text{cell}} = 0.12$ – 0.35 L).

For the disinfection experiments, wastewater (WW) was taken from a municipal sewage treatment plant in Dresden. Selected chemical parameters of the wastewater and the model water used for the characterization of the electrodes are summarized in Table 1.

Experimental examinations involving photo and dark repair of *E. coli* in UV irradiated wastewater were conducted as follows.

The influence of lighting conditions on the repair of *E. coli* was examined by exposing the bacteria to a sublethal UV fluence of 150 J m^{-2} since, in practice, the reduction of the lethal UV fluence ($\geq 400 \text{ J m}^{-2}$) to a sublethal level is often a result of fluctuating, high TSS concentrations of the biologically treated wastewater. Afterwards, samples were stored for 1–48 hours at light intensities of 470 and 4,200 Lux (daylight fluorescent lamp: Philips TL-D90/965, 18 W) as well as under dark conditions at 20°C .

The influence of temperature between 10 and 30°C and the effect of pH between 5.7 and 8.1 on the reactivation of *E. coli* were examined by storing the UV-treated samples

Table 1 | Selected chemical parameters of the applied secondary effluents and of the model water

Chemical parameter	WW 1	WW 2	MW
κ in $\mu\text{S in cm}^{-1}$	1,212	1,411	1,482
SATC_{254} in m^{-1}	18.8	19.0	nm
$T_{254, \text{unfiltered}}$ in %	64	65	nm
TSS in mg L^{-1}	8.1	8.2	nm
pH	7.2	7.0	nm
DOC in mg L^{-1}	9.1	9.2	nm
$\beta(\text{Cl}^-)$ in mg L^{-1}	140	130	150
$\beta(\text{SO}_4^{2-})$ in mg L^{-1}	147	170	480
$\beta(\text{NO}_2^-)$ in mg L^{-1}	nd	nd	nd
$\beta(\text{NO}_3^-)$ in mg L^{-1}	73	38	nd
$\beta(\text{PO}_4^{3-})$ in mg L^{-1}	10	1.5	nd
$\beta(\text{free chlorine})$ in mg L^{-1}	nd	nd	nd
$\beta(\text{ClO}_2^-)$ in mg L^{-1}	nd	nd	nd
$\beta(\text{ClO}_3^-)$ in mg L^{-1}	nd	nd	nd
$\beta(\text{ClO}_4^-)$ in mg L^{-1}	nd	nd	nd
$\beta(\text{NH}_4^+)$ in mg L^{-1}	nd	nd	nm
AOX in $\mu\text{g L}^{-1}$	22	27	nm
$\beta(\text{TCM})$ in $\mu\text{g L}^{-1}$	0.1	0.1	nm
$\beta(\text{BrDCM})$ in $\mu\text{g L}^{-1}$	nd	nd	nm
$\beta(\text{DBrCM})$ in $\mu\text{g L}^{-1}$	nd	nd	nm
$\beta(\text{TBrM})$ in $\mu\text{g L}^{-1}$	nd	nd	nm
$\beta_{\text{total}}(\text{THMs})$ in $\mu\text{g L}^{-1}$	0.1	0.1	nm

nm, not measured; nd, not detectable.

SATC_{254} , spectral attenuation coefficient at 254 nm (unfiltered WW); $T_{254, \text{unfiltered}}$, transmittance at 254 nm (unfiltered WW); TSS, total suspended solids; AOX, adsorbable organically bound halogens; DOC, dissolved organic carbon.

THMs, trihalomethanes; TCM, trichloromethane; BrDCM, bromodichloromethane; DBrCM, dibromochloromethane; TBrM, tribromomethane.

(WW 1, WW 2, $H = 150 \text{ J m}^{-2}$) at a light intensity of 4,200 Lux and under dark conditions for 48 hours.

The characterization of the electrochemical unit was realized with model water (MW, Table 1).

The electrochemical production rate of free chlorine as well as of total oxidants at various electrode materials (thin film BDD, particle BDD and MOX electrodes (Ir/Ru/Ti)) was determined at a flow rate of 100 L h^{-1} and current densities of 50, 70 and 100 mA cm^{-2} . In the process, the particle BDD electrodes were supplied indirectly with direct current compared to thin film BDD and MOX electrodes (Ir/Ru/Ti). BDD particles of the particle electrode were embedded in a nonconductive plastic matrix. Therefore, the electrolysis cell

was operated in a bipolar set-up via MOX electrodes (Ir-Ru/Ti) which acted as contact electrodes.

To examine the prevention of bacterial regrowth, the UV irradiated wastewater (WW 1, $H = 150 \text{ J m}^{-2}$) was treated electrochemically and the minimum concentration of total oxidants suppressing the reactivation of coliforms was determined. The examinations were conducted at temperatures between 10 and 30°C and at pH values ranging from 5.7 to 8.1. Furthermore, the expenditure of energy and the formation of unwanted organic (AOX, THMs) and inorganic (chlorite, chlorate and perchlorate) by-products were investigated.

RESULTS AND DISCUSSION

Limits of UV disinfection of biologically treated wastewater – reactivation of *E. coli* after UV irradiation

Influence of light intensity

Since *E. coli* in controls, present in the same concentration as undamaged *E. coli* bacteria in UV disinfected samples ($400\text{--}600 \text{ E. coli}$ in 100 mL , $H = 150 \text{ J m}^{-2}$), did not show any reproduction within 1–48 h (data not shown), the reactivation, as illustrated in Figure 2, is, first and foremost, due to DNA repair of reversibly damaged *E. coli*. It becomes apparent that the reactivation significantly depends on the given lighting conditions. The lower the light intensity, the

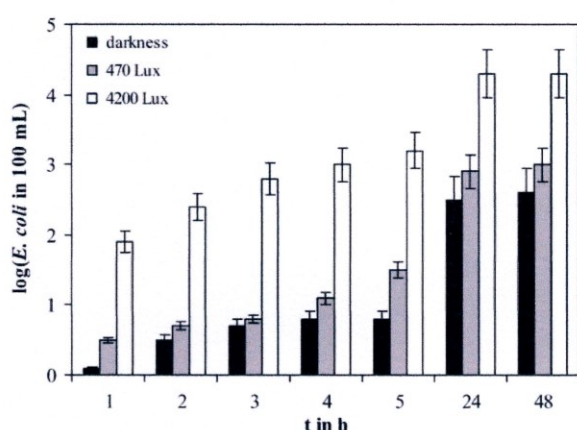


Figure 2 | Time course of *E. coli* reactivation after UV irradiation (WW 1, $H = 150 \text{ J m}^{-2}$, $T_{254} = 64\%$) at various light intensities ($E = 0, 470$ and $4,200 \text{ Lux}$, $\vartheta = 20^\circ\text{C}$).

less regrowth of bacteria was observed. According to that, the extent of photo repair at 470 Lux is reduced by a factor of 1.5–3.5 compared to 4,200 Lux. The degree of reactivation is lowest in darkness. Under these conditions, bacteria are reactivated by 2.7 log levels. However, at a light intensity of 4,200 Lux, the degree of reactivation amounts to 4.3 log levels within 24 h. A further increase of storage time leads to a marginal enhancement of regrowth so that a maximum value results within 24–48 h. Both photo and dark repair are enzymatic processes. A large number of various enzymes are involved in dark repair. The photoreactivation is primarily catalysed by the photolyase enzyme (Lindenauer & Darby 1994).

The higher the light intensity, the more energy per time unit is available for the photolyase enzyme to monomerize the pyrimidine and thymine dimers of the bacterial DNA generated during UV irradiation. Thus, the extent of reactivated bacteria increases according to rising light intensity.

Influence of temperature

Due to seasonal fluctuations of temperature, its influence on photo and dark repair has been investigated within a range between 10 and 30°C . It could be observed that the degree of reactivation increases with rising temperature (Figure 3).

At 10°C , the extent of *E. coli* reactivation is lowest both under light and dark conditions. At light it is 1.3 log levels and in darkness 1.6 log levels lower than at 30°C . At

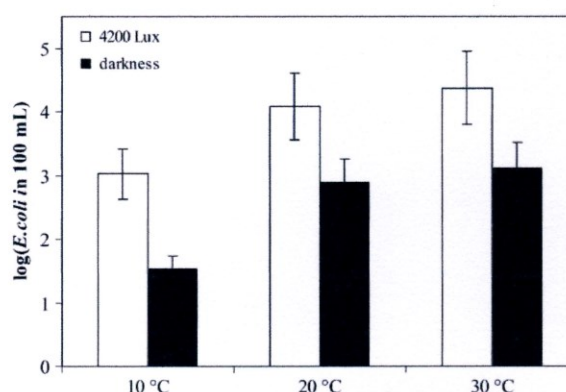


Figure 3 | Photo ($E = 4,200 \text{ Lux}$) and dark repair of *E. coli* after UV irradiation (WW 1, $H = 150 \text{ J m}^{-2}$, $T_{254} = 64\%$) and 48 hour storage in dependence on temperature.

20 °C and 30 °C, bacterial regrowth shows a comparable extent. In general, the extent of *E. coli* reactivation is reduced by a factor of 1.2–1.5 in darkness compared to light conditions.

The increase of bacterial regrowth at rising temperature is the result of rising reaction rates of enzymatic processes with increasing temperature on the one hand. On the other, the formation of enzyme dimer complexes, being a precondition for DNA repair, depends on temperature (Lindenauer & Darby 1994). The higher the temperature, the more preferentially and faster the dimer complexes are formed.

Influence of pH

The determination of the pH effect on photo and dark repair was realized at pH values within a range between 5.7 and 8.1 (typical pH range for biologically treated wastewater).

It follows from Figure 4 that the extent of photo and dark repair is largely independent of the pH value. The degree of photoreactivated *E. coli* amounts to 4.0–4.2 log levels. The reactivation under dark conditions reaches 3.0–3.3 log levels.

The comparable bacterial regrowth at the given pH range can be explained by the unchanging activity of the enzymes required for the repair processes. Thus, a significant binding of the photolyase enzyme to pyrimidine dimers of the UV damaged DNA is possible within a broad pH range between 5.5 and 8.5 (Sancar *et al.* 1985).

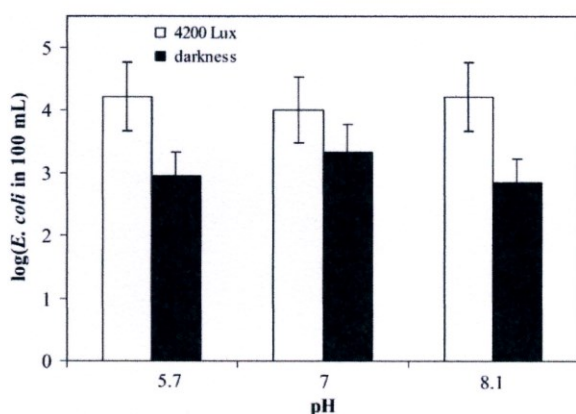


Figure 4 | Photo ($E = 4200$ Lux) and dark repair of *E. coli* after UV irradiation (WW 2, $H = 150 \text{ J m}^{-2}$, $T_{254} = 65\%$) and 48 hour storage ($\vartheta = 20^\circ \text{C}$) in dependence on pH value.

Prevention of bacterial regrowth by UV/electrolysis hybrid technology

Screening of electrodes

The dominating role of electrochemically generated free chlorine in the disinfection process of biologically treated wastewater could be verified by Schmalz *et al.* (2009). Bound chlorine (e.g., chloramines) as well as further oxidants produced by anodic oxidation, such as chlorine dioxide, peroxydisulfate, etc., could act as disinfectants in addition to free chlorine. These further oxidants exhibit a cross-sensitivity to the photometric determination of total chlorine (Bergmann 2006; Schmalz *et al.* 2009). Therefore, the production rate of total oxidants ($c_{\text{total oxidants}}/Q_v$) was investigated in addition to the production rate of free chlorine ($c_{\text{free chlorine}}/Q_v$). It becomes apparent from Figure 5 that the production rate of free chlorine and total oxidants is highest at particle BDD electrodes (BDD/par) with 80–92 mg (Ah)^{-1} . The formation of free chlorine and total oxidants per Ah at particle BDD electrodes (BDD/Nb) is 7–8 times higher than at thin film BDD electrodes. In general, the production rate of free chlorine and total oxidants is largely unaffected by the current density in a range between 50 and 70 mA cm^{-2} .

Electric charge input and expenditure of energy

Examinations involving the electrolysis of the UV irradiated, biologically treated wastewater ($H = 150 \text{ J m}^{-2}$, $T_{254} = 58\%$) at an electric charge input within a range of 0.0033 and 0.012 Ah L^{-1} showed that the reactivation of the *E. coli* (4,200 Lux) is reduced when the electric charge input is increased (Figure 6).

The photoreactivation of the *E. coli* after 72 h ($\vartheta = 20^\circ \text{C}$, $\text{pH} = 7.2$) amounts to 4 log levels at the lowest electric charge input of 0.0033 Ah L^{-1} that is comparable with the extent of photoreactivation after UV irradiation. Increasing the charge input by the factor 2.5 results in a reduction of bacterial regrowth by 0.5 log levels. In contrast, a charge input of 0.012 Ah L^{-1} prevents the photoreactivation of *E. coli*. The same findings were observed for dark repair (data not shown). The prevention of photo and dark repair results from the irreversible damage of the bacterial DNA

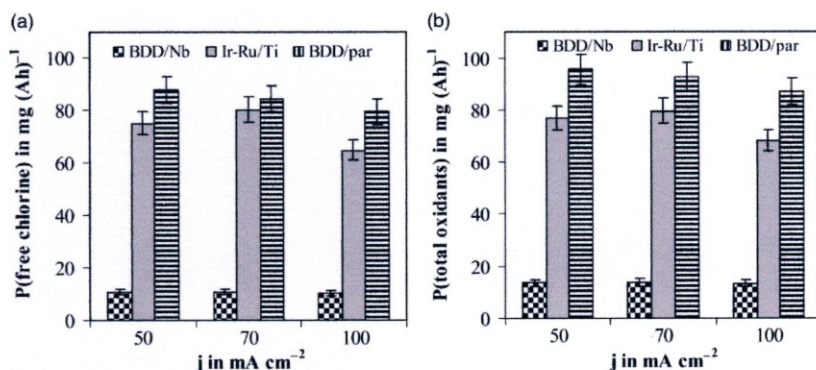


Figure 5 | Production rate of free chlorine (a) and total oxidants (b) on various electrode materials in dependence on current density (MW, $\beta(\text{Cl}^-) = 150 \text{ mg L}^{-1}$, $\beta(\text{SO}_4^{2-}) = 480 \text{ mg L}^{-1}$, $V = 100 \text{ L h}^{-1}$).

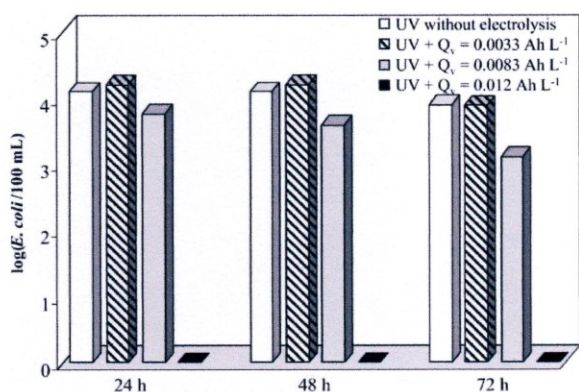


Figure 6 | Photoreactivation ($E = 4,200 \text{ Lux}$) of *E. coli* after UV/electrolysis (WW 1, $H = 150 \text{ J m}^{-2}$, $T_{254} = 64\%$, $Q_v = 0.0033\text{--}0.012 \text{ Ah L}^{-1}$, $j = 0.7\text{--}2.3 \text{ mA cm}^{-2}$, MOX-electrodes) and 24–72 hour storage ($\theta = 20^\circ \text{C}$).

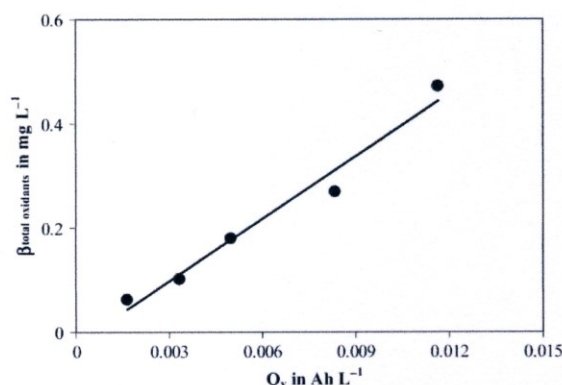


Figure 7 | Concentration of electrochemically generated total oxidants in dependence on the electric charge input (WW 1, $T_{254} = 64\%$, $C_{\text{chlorid}} = 140 \text{ mg L}^{-1}$, $\text{DOC} = 9.0 \text{ mg L}^{-1}$, $\theta = 20^\circ \text{C}$, MOX-electrodes).

caused by the electrochemically generated total oxidants. Free chlorine was observed in marginal concentrations ($\leq 0.1 \text{ mg L}^{-1}$) directly after the electrolysis cell. This germicide would have to interact with the bacteria for 60 min to cause an irreversible *E. coli* reduction of 5 log levels (Haaken *et al.* 2012). Since free chlorine was already not observed after a few minutes, the prevention of bacterial regrowth is the result of the germicidal effect of bound chlorine (e.g., chloramines) as well as of other electrochemically generated oxidants (e.g., hydrogen peroxide, chlorine dioxide).

Furthermore, a linear enhancement of the concentration of total oxidants with increasing charge inputs has been observed (Figure 7). Thus, a concentration of total oxidants of 0.1 mg L^{-1} was determined at an electric charge input of

0.0033 Ah L^{-1} , whereas an electric charge input of 0.012 Ah L^{-1} results in a concentration of 0.5 mg L^{-1} .

As a further result of this examination, photo and dark repair of *E. coli* (24–72 hours) are prevented at pH levels of 5.7–8.1 and temperatures ranging from 10 to 30°C at a minimum concentration of total oxidants of 0.5 mg L^{-1} . Germicide concentrations lower than 0.5 mg L^{-1} caused no irreversible damage of coliforms within 72 hours (bacteria can be protected by microbial aggregation or particles).

Since the production rate of total oxidants is affected by the electrode material, the electric charge input and expenditure of energy needed for a germicide concentration of 0.5 mg L^{-1} varies. The detailed data are summarized in Table 2.

Table 2 | Electric charge input and expenditure of energy of the UV/electrolysis hybrid reactor for the prevention of *E. coli* reactivation (20 W low pressure mercury lamp, $\beta_{\text{total oxidants}} = 0.5 \text{ mg L}^{-1}$, $\theta = 10\text{--}30^\circ\text{C}$, $\text{pH} = 5.7\text{--}8.1$)

	Thin film BDD electrode	Particle BDD electrode	MOX electrode
I in A	5	5	5
U in V	19.5	31	10
Q_v in Ah L^{-1}	0.075	0.025	0.012
$E_{\text{UV+electrolysis}}$ in kWh m^{-3}	1.76	0.88	0.17

It follows from Table 2 that the UV/electrolysis hybrid reactor operating with MOX electrodes requires a 2–6 times lower electric charge input and shows a 5–10 times lower energy consumption compared to BDD electrodes.

This result demonstrates that the electrode material is a decisive criterion for a moderate energy consumption of the hybrid reactor. However, further long-term studies are necessary.

By-product formation

The formation of selected inorganic and organic by-products at BDD and MOX electrodes is summarized in Table 3.

The inorganic by-products chlorite and chlorate could neither be detected at MOX electrodes nor at particle BDD electrodes within the applied experimental conditions. Using thin film BDD electrodes, chlorate was measured in a concentration of 0.4 mg L^{-1} and perchlorate was found in a

Table 3 | Formation of selected inorganic and organic by-products (20 W low-pressure mercury lamp, $\beta_{\text{total oxidants}} = 0.5 \text{ mg L}^{-1}$)

	Thin film BDD electrode	Particle BDD electrode	MOX electrode
β (ClO_2^-) in mg L^{-1}	nd	nd	nd
β (ClO_3^-) in mg L^{-1}	0.4	nd	nd
β (ClO_4^-) in mg L^{-1}	4.2	0.5	nd
$\text{AOX}_{\text{directly after UV/electrolysis}}$ in $\mu\text{g L}^{-1}$	56.9	75.3	50.1
$\text{AOX}_{24 \text{ h}}$ in $\mu\text{g L}^{-1}$	135	115	124
β_{total} (THMs) in $\mu\text{g L}^{-1}$	nd	nd	nd

nd, not detectable.

THMs, trihalomethanes (trichloromethane, bromodichloromethane, dibromochloromethane, tribromomethane).

AOX, adsorbable organically bound halogens.

concentration of 4.2 mg L^{-1} . At particle BDD electrodes, a perchlorate concentration of 0.5 mg L^{-1} could be determined. On the contrary, perchlorate could not be observed at MOX electrodes.

Chlorite is a short-lived intermediate. Thus, it was not observed at MOX and BDD electrodes. In contrast to MOX electrodes, BDD electrodes work with a wide potential window (up to 2.8 V for oxygen generation and about -1.3 V for hydrogen generation) so that electrochemically produced reactive oxygen species (e.g., hydroxyl radicals) can indirectly oxidize chlorite via chlorate to perchlorate (Tröster *et al.* 2004; Bergmann & Rollin 2007). Moreover, thin film BDD electrodes need the highest electric charge input to produce the required minimum total oxidants concentration of 0.5 mg L^{-1} . This further contributes to a higher perchlorate concentration compared with particle BDD electrodes.

The AOX production directly after the electrolysis cells amounts to $50\text{--}75 \mu\text{g L}^{-1}$. An increase of the AOX concentration up to $115\text{--}135 \mu\text{g L}^{-1}$ was observed after 24 hours. However, no THMs could be observed.

CONCLUSIONS

The synergistic utilization of the combination of UV irradiation using a 20 W low pressure mercury lamp and electrochemical treatment using MOX electrodes represents an energy-efficient technology for decentralized wastewater reclamation. The supplementation of UV disinfection with an electrolysis unit ensures a reliable, sustained bacterial reduction being precondition for a sufficient storability and secure utilization of reclaimed wastewater as process and irrigation water. The unwanted reactivation of reversibly UV damaged faecal coliforms (*E. coli*), whose extent is considerably increased with rising light intensity and rising temperature, is completely prevented at a concentration of total oxidants of 0.5 mg L^{-1} ($T = 10\text{--}30^\circ\text{C}$, $\text{pH} = 5.7\text{--}8.1$). For this, an expenditure of energy of 0.17 kWh m^{-3} is needed.

The formation of inorganic and organic by-products using MOX electrodes is marginal to moderate. Nevertheless, a careful approach to the use of MOX electrodes in

the disinfection by UV/electrolysis is recommended due to the formation of AOX.

In the UV/electrolysis hybrid module, the UV unit can be located upstream or downstream of the electrolysis cell. Downstream positioning of the UV lamp could contribute to reduce the coverings on the quartz sleeves of the UV lamps due to the continuous wetting with a solution of total oxidants. As a result, this includes the possibility of increasing the cleaning intervals contributing to a low-maintenance long-term operation of the UV/electrolysis hybrid reactor. Studies on this subject and on possible limits of the UV/electrolysis hybrid technology (e.g., the influence of total suspended solids) are currently being conducted.

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors thank the European Regional Development Fund and the Free State of Saxony for the financial support of this project.

REFERENCES

- Antonelli, M., Mezzanotte, V. & Nurizzo, C. 2008 Wastewater disinfection by uv irradiation: short and long-term efficiency. *J. Environ. Eng. Sci.* **25**, 363–373.
- Bergmann, H. 2006 Zur Anwendung der DPD-Methode bei der Desinfektionselektrolyse von Trinkwasser (Application of the DPD method in the disinfection electrolysis of drinking water). *GWF Wasser Abwasser* **147**, 780–786.
- Bergmann, H., Iourtchouk, T., Schöps, K. & Bouzek, K. 2002 New UV irradiation and direct electrolysis – promising methods for water disinfection. *Chem. Eng. J.* **85**, 111–117.
- Bergmann, M. E. H. & Rollin, J. 2007 Product and by-product formation in laboratory studies on disinfection electrolysis of water using boron-doped diamond anodes. *Catal. Today* **124**, 198–203.
- Cornel, P. & Weber, B. 2006 Physikalisch-chemische Abwasserreinigung zur Erzeugung von Bewässerungswasser (Physico-chemical wastewater treatment for preparation of irrigation water). *Wasser Abwasser* **147**, 215–220.
- Costán-Longares, A., Montemayor, M., Payán, A., Méndez, J., Jofre, J., Mujeriego, R. & Lucena, F. 2008 Microbial indicators and pathogens: Removal, relationships and predictive capabilities in water reclamation facilities. *Water Res.* **42**, 4439–4448.
- Furuta, T., Rychen, Ph., Tanaka, H., Pupunat, L., Haenni, W. & Nishiki, Y. 2004 *Legionella* inactivation with diamond electrodes. *Diamond Relat. Mater.* **13**, 2016–2019.
- Furuta, T., Rychen, Ph., Tanaka, H., Pupunat, L., Haenni, W. & Nishiki, Y. 2005 Application of diamond electrodes for water disinfection. In: *Diamond Electrochemistry* (A. Fujishima, Y. Einaga, T. N. Rao & D. A. Tryk, eds). Elsevier, Japan, pp. 525–542.
- Haaken, D., Dittmar, T., Schmalz, V. & Worch, E. 2012 Influence of operating conditions and specific water parameters on the electrochemical bulk disinfection of biologically treated sewage at boron-doped diamond (BDD) electrodes. *Desalin. Water Treat.* **46**, 160–167.
- Haenni, W., Gobet, J., Pupunat, L., Rychen, Ph. & Correa, B. 2001 Loop-controlled chlorine production for disinfection of pool-water using boron-doped diamond electrodes. *Electrochem. Soc. Proc.* **25**, 16–23.
- Hijnen, W. A. M., Beerendonk, E. F. & Medema, G. J. 2006 Inactivation credit of UV radiation for viruses, bacteria and protozoan (oo)cysts in water: A review. *Water Res.* **40**, 3–22.
- Jesien, W. 1998 Fouling of UV Lamps During Disinfection in Pilot Plant and Full Scale Applications. M. Eng. Project Report, Dept of Civil Engineering and Applied Mechanics, McGill University, Montreal, QC, Canada.
- Kirmaier, N., Hose, G. H. & Reis, A. 1984 Theorie, Verfahrenstechnik und Praxisergebnisse der anodischen Oxidation (Theory, process engineering and practical results of the anodic oxidation). *Neue DELIWA Zeitschrift* **6**, 260–266.
- Koukouraki, E. & Diamadopoulos, E. 2002 THM formation during chlorination of treated municipal wastewater. *Water Sci. Technol.* **2**, 235–242.
- Kraft, A. 1999 Anodische Oxidation zur Wasserreinigung und –desinfektion (Anodic oxidation for water purification and disinfection). *WLB Wasser, Luft und Boden* **9**, 42–46.
- Kraft, A. 2008 Electrochemical water disinfection: A short review. *Platinum Metals Rev.* **52**, 177–185.
- Kraft, A., Stadelmann, M., Blaschke, M., Kreysig, D., Sandt, B., Schröder, F. & Rennau, J. 1999a Electrochemical water disinfection Part I: Hypochlorite production from very dilute chloride solutions. *J. Appl. Electrochem.* **29**, 861–868.
- Kraft, A., Stadelmann, M., Blaschke, M., Kreysig, D., Sandt, B., Schröder, F. & Rennau, J. 1999b Electrochemical water disinfection. Part II: Hypochlorite production from potable water, chlorine consumption and the problem of calcareous deposits. *J. Appl. Electrochem.* **29**, 895–902.
- Kraft, A., Wünsche, M., Stadelmann, M. & Blaschke, M. 2003 Electrochemical water disinfection. *Rec. Res. Devel. Electrochem.* **6**, 27–55.
- Kraft, A., Wünsche, M., Stadelmann, M. & Kirstein, W. 2000 Einsatz von Diamantelektroden für die elektrolytische Wasserreinigung und –desinfektion durch Anodische Oxidation (Application of diamond electrodes for the electrolytic water purification and disinfection using anodic oxidation). *Galvanotechnik* **91**, 335–339.

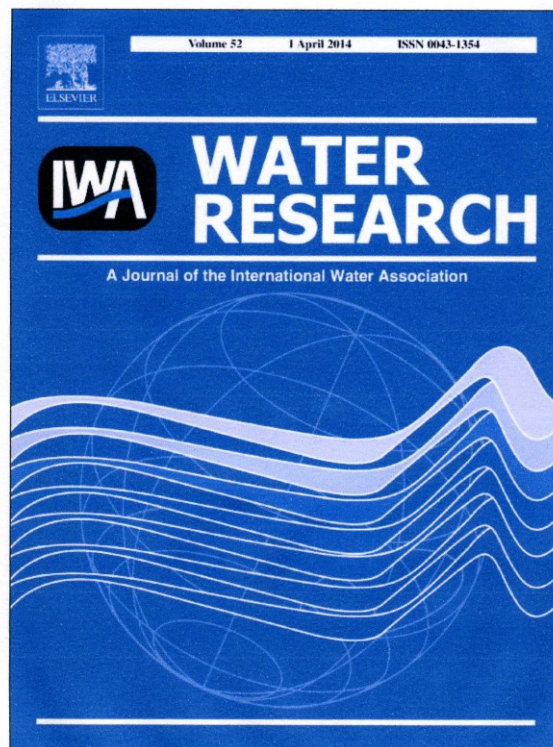
- Kruithof, J. C., Van der Leer, R. C. & Hijnen, W. A. M. 1992 Practical experiences with UV disinfection in the Netherlands. *J. Water SRT-Aqua* **41**, 88–94.
- Lin, L., Johnston, C. T. & Blatchley III, E. R. 1999a Inorganic fouling at quartz: water interfaces in ultraviolet photoreactors – I. Chemical characterisation. *Water Res.* **33**, 3321–3329.
- Lin, L., Johnston, C. T. & Blatchley III, E. R. 1999b Inorganic fouling at quartz: water interfaces in ultraviolet photoreactors – II. Temporal and spatial distribution. *Water Res.* **33**, 3330–3338.
- Lindenauer, K. G. & Darby, J. L. 1994 Ultraviolet disinfection of wastewater: Effect of dose on subsequent photoreactivation. *Water Res.* **28**, 805–817.
- Martínez-Huitle, C. A. & Brillas, E. 2008 Electrochemical alternatives for drinking water disinfection. *Angew. Chem.* **47**, 1998–2005.
- Oguma, K., Katayama, H., Mitani, H., Morita, S., Hirata, T. & Ohgaki, S. 2001 Determination of pyrimidine dimers in *Escherichia coli* and *Cryptosporidium parvum* during UV light inactivation, photoreactivation, and dark repair. *Appl. Environ. Microbiol.* **67**, 4630–4637.
- Panizza, M. & Cerisola, G. 2005 Application of diamond electrodes to electrochemical processes. *Electrochim. Acta* **51**, 191–199.
- Popp, W. 1998 Disinfection of secondary effluents from sewage treatment plants – requirements and applications. *Eur. Water Manage.* **1**, 27–31.
- Queck, P. & Hu, J. 2008 Indicators for photoreactivation and dark repair studies following ultraviolet disinfection. *J. Ind. Microbiol. Biotechnol.* **35**, 533–541.
- Reis, A. 1976 Keimtötung und Abbau organischer Schadstoffe durch die anodische Oxidation (Germ killing and degradation of organic pollutants by anodic oxidation). *GIT Fachz. Lab.* **20**, 197–204.
- Reis, A. & Henninger, T. 1951 Zerstörung maligner Wachstumsenergie durch anodische Oxidation (Destruction of malignant growth energy using anodic oxidation). *Klin. Wschr.* **31**, 39–40.
- Sancar, G. B., Smith, F. W. & Sancar, A. 1985 Binding of *Escherichia coli* DNA photolyase to UV-irradiated DNA. *Biochem.* **24**, 1849–1855.
- Sheriff, M. & Gehr, R. 2001 Laboratory investigation of inorganic fouling of low pressure UV disinfection lamps. *Water Qual. Res. J. Can.* **36**, 71–92.
- Singer, P. C., Weinberg, H. S., Brophy, K., Liang, L., Roberts, M., Grissted, I., Krasner, S., Baribeau, H., Arora, H. & Najm, I. 2002 *Relative dominants of haloacetic acids and trihalomethanes in treating drinking water*. AWWA Research Foundation, Denver, Colorado.
- Schmalz, V., Dittmar, T., Haaken, D. & Worch, E. 2009 Electrochemical disinfection of biologically treated local sewage by using boron doped diamond (BDD) electrodes – contribution for direct reuse of domestic wastewater. *Water Res.* **43**, 5260–5266.
- Tchobanoglous, G. & Angelakis, A. N. 1996 Technologies for wastewater treatment appropriate for reuse: Potential for applications in Greece. *Water Sci. Technol.* **33**, 15–24.
- Tröster, I., Schäfer, L., Fryda, M. & Mattheé, T. 2004 Electrochemical advanced oxidation process using DiaChem® electrodes. *Water Sci. Technol.* **49**, 207–212.
- UNEP 2007 *Global Environmental Outlook 4*. United Nations Environment Programme, Nairobi, Kenya.
- USEPA 1986 *Ultraviolet Disinfection of Wastewaters from Secondary Effluent and Combined Sewer Overflows*. EPA/600/S2-86/005, US Environmental Protection Agency, Water Engineering Research Laboratory, Cincinnati, OH.
- USEPA 1996 *Ultraviolet Light Disinfection Technology in Drinking Water Application – an Overview*. EPA 811-R-96-002, US Environmental Protection Agency, Office of Ground Water and Drinking Water, Washington, DC.
- USEPA 1999 *Wastewater Technology Fact Sheet Ultraviolet Disinfection*. EPA 832-F-99-064, US Environmental Protection Agency, Office of Water, Washington, DC.
- von Gunten, U. 2003 *Ozonation of drinking water: Part II. Disinfection and by-product formation in presence of bromide, iodide or chlorine*. *Water Res.* **37**, 1469–1487.
- Whitby, G. E., Palmateer, G., Cook, W. G., Maarschalkerweerd, J., Huber, D. & Flood, K. 1984 Ultraviolet disinfection of secondary effluent. *J. WPCF* **56**, 844–850.
- White, C. S., Jernigan, E. B. & Venosa, A. 1986 A study of operational ultraviolet disinfection equipment at secondary treatment plants. *J. WPCF* **58**, 181–192.
- Zimmer, J. L. & Slawson, R. M. 2002 Potential repair of *Escherichia coli* DNA following exposure to UV radiation from both medium- and low-pressure UV sources used in drinking water treatment. *Appl. Environ. Microbiol.* **68**, 3293–3299.

First received 6 February 2013; accepted in revised form 11 July 2013. Available online 22 August 2013

3.3 Disinfection of biologically treated wastewater and prevention of biofouling by UV/electrolysis hybrid technology: Influence factors and limits for domestic wastewater reuse

Die Untersuchungen erfolgten innerhalb des Kooperationsprojektes „Entwicklung eines Moduls zur Desinfektion von Kleinkläranlagenabläufen auf Grundlage der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik zur Gewinnung von Brauchwasser“. Das Projekt wurde durch den Europäischen Fond für regionale Entwicklung und den Freistaat Sachsen finanziell unterstützt sowie in Kooperation mit der Firma Bergmann Clean Abwassertechnik GmbH durchgeführt.

Provided for non-commercial research and education use.
Not for reproduction, distribution or commercial use.



This article appeared in a journal published by Elsevier. The attached copy is furnished to the author for internal non-commercial research and education use, including for instruction at the authors institution and sharing with colleagues.

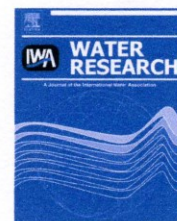
Other uses, including reproduction and distribution, or selling or licensing copies, or posting to personal, institutional or third party websites are prohibited.

In most cases authors are permitted to post their version of the article (e.g. in Word or Tex form) to their personal website or institutional repository. Authors requiring further information regarding Elsevier's archiving and manuscript policies are encouraged to visit:

<http://www.elsevier.com/authorsrights>

Available online at www.sciencedirect.com

ScienceDirect

journal homepage: www.elsevier.com/locate/watres

Disinfection of biologically treated wastewater and prevention of biofouling by UV/electrolysis hybrid technology: Influence factors and limits for domestic wastewater reuse

Daniela Haaken, Thomas Dittmar*, Viktor Schmalz, Eckhard Worch

TU Dresden, Institute of Water Chemistry, 01062 Dresden, Germany

ARTICLE INFO

Article history:

Received 30 July 2013

Received in revised form

20 December 2013

Accepted 21 December 2013

Available online 2 January 2014

Keywords:

Wastewater reclamation

Wastewater reuse

UV/electrolysis hybrid technology

Disinfection

Prevention of bacterial reactivation and biofouling

ABSTRACT

Reuse of wastewater contributes significantly to an efficient and sustainable water usage. However, due to the presence of a multitude of pathogens (e.g. bacteria, viruses, worms, protozoa) in secondary effluents, disinfection procedures are indispensable. In decentralized wastewater treatment, UV irradiation represents one of the most common disinfection methods in addition to membrane processes and to a certain extent electrochemical procedures. However, the usage of UV disinfected secondary effluents for domestic (sanitary) or irrigation purposes bears a potential health risk due to the possible photo and dark repair of reversibly damaged bacteria.

Against this background, the application of the UV/electrolysis hybrid technology for disinfection and prevention of bacterial reactivation in biologically treated wastewater was investigated in view of relevant influence factors and operating limits. Furthermore, the influence of electrochemically generated total oxidants on the formation of biofilms on quartz glass surfaces was examined, since its preventive avoidance contributes to an enhanced operational safety of the hybrid reactor.

It was found that reactivation of bacteria in UV irradiated, biologically treated wastewater can be prevented by electrochemically produced total oxidants. In this regard, the influence of the initial concentration of the microbiological indicator organism *Escherichia coli* (*E. coli*) ($9.3 \cdot 10^2$ – $2.2 \cdot 10^5$ per 100 mL) and the influence of total suspended solids (TSS) in the range of 11–75 mg L⁻¹ was examined. The concentration of total oxidants necessary for prevention of bacterial regrowth increases linearly with the initial *E. coli* and TSS concentration. At an initial concentration of 933 *E. coli* per 100 mL, a total oxidants concentration of 0.4 mg L⁻¹ is necessary to avoid photo reactivation (at 4200 Lux), whereas 0.67 mg L⁻¹ is required if the *E. coli* concentration is enhanced by 2.4 log levels ($c_{\text{TSS}} = \text{constant} = 13 \text{ mg L}^{-1}$). The prevention of dark repair is ensured with 25–50% lower concentration of total oxidants. An increase of the TSS concentration from 11 mg L⁻¹ to 75 mg L⁻¹ leads to a triplication of the need of total oxidants from 0.6 mg L⁻¹ to 1.8 mg L⁻¹ ($3 \cdot 10^5$ *E. coli* per 100 mL).

The energy consumption of the hybrid reactor varies from 0.17 kWh m⁻³ to 0.94 kWh m⁻³ depending on the TSS concentration (11–75 mg L⁻¹).

* Corresponding author. Tel.: +49 351 463 33872; fax: +49 351 463 37271.

E-mail address: Thomas.Dittmar@tu-dresden.de (T. Dittmar).

0043-1354/\$ – see front matter © 2014 Elsevier Ltd. All rights reserved.

<http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2013.12.029>

Furthermore, biofilm formation on quartz glass surfaces, of which the sleeves of UV lamps consist, can be suppressed by electrochemically produced total oxidants at a concentration of at least 1 mg L^{-1} which ensures high operational safety of the hybrid reactor combined with large maintenance intervals.

© 2014 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The limited and unevenly distributed global water resources in conjunction with a growing world population lead to an increasing water shortage in different parts of the world. Therefore, the protection and sustainable use of high quality water resources are essential parts of an innovative resource management.

Biologically treated wastewater represents a valuable resource in view of its source and composition. Activities in research and development focus currently on decentralized and semicentralized concepts, since their structures offer better conditions for the establishment of recycling systems and innovations in wastewater technology can be implemented more easily.

The use of reclaimed wastewater for different domestic applications (e.g. sanitary facilities such as toilet flushing) or irrigation purposes contribute significantly to an efficient and sustainable water use. The quality requirements for wastewater reuse are predominantly oriented towards the planned usage and they are regulated in widely differing norms and legal provisions specific to the respective countries (WHO, 1989; USEPA, 2004). Besides the residual concentration of inorganic nutrients, total suspended solids (TSS) and dissolved organic matter, the microbiological contamination of wastewater is an important criterion for its safe reuse. The latter is typically characterized by using total coliforms and fecal coliforms as indicator organisms. The adherence to microbial quality standards and guidance values is solely ensured by the implementation of specific measures that secure the reduction of pathogenic bacteria which are still contained in wastewater after mechanical-biological treatment (Popp, 1998a). Established large-scale wastewater disinfection technologies like chlorination and ozonation have crucial drawbacks in their adaptation to small-scale operation, in view of plant safety, e.g. storage of chemicals, generation of harmful by-products etc. (Lazarova et al., 1999). For smaller systems the initial cost, the safety, the reliability and operation convenience are usually of predominant importance for adopting a particular process of disinfection.

In decentralized wastewater treatment, membrane processes (Jefferson et al., 2001; Lazarova et al., 1999), UV irradiation (Rajala et al., 2006) and to a certain extent electrochemical procedures (Schmalz et al., 2009; Haaken et al., 2012) are applied for removal of pathogens. These procedures represent efficient methods in bacterial reduction. However, fouling/scaling processes, fluctuating wastewater quality and partly bacterial reactivation (particularly in UV-processes: Lindenauer and Darby, 1994; Zimmer and Slawson, 2002; Oguma et al., 2001; Queck and Hu, 2008) limit

the applicability of these procedures. The use of electrochemical disinfection can be problematic due to the possible formation of organic (AOX: adsorbable organically bound halogens) (Haaken et al., 2012; Bergmann and Rollin, 2007; Deborde and von Gunten, 2008) and inorganic (chlorite, chlorate, perchlorate) by-products. However, disadvantages of UV irradiation and electrolysis could be compensated and limits could be overcome by using the synergistic effect of their combined application.

The UV/electrolysis hybrid technology represents an energy-efficient method for reclamation of biologically treated wastewater. Here, the UV disinfection constitutes the primary disinfection method within the hybrid module. The additional electrochemical treatment of the UV irradiated wastewater provides a residual disinfection due to the formation of oxidizing germicides (Haaken et al., 2013). Haaken et al. (2013) have shown that photo and dark repair mechanisms of bacteria (total coliforms, *Escherichia coli*) are completely prevented by a total oxidant concentration of 0.5 mg L^{-1} in a wide range of temperature ($T = 10\text{--}30^\circ\text{C}$) and of pH ($\text{pH} = 5.7\text{--}8.1$) under a low energy consumption of 0.17 kWh m^{-3} ($\text{CT}_{\text{TSS}} = \text{constant} = 8 \text{ mg L}^{-1}, 1\text{--}3 \cdot 10^5 \text{ E. coli}_0 \text{ per } 100 \text{ mL}$). Since the marginal amount of electrochemically produced free chlorine ($\leq 0.1 \text{ mg L}^{-1}$) observed directly after the electrolysis cell was not detectable after a few minutes, the authors concluded that the irreversible bacterial damage was mainly caused by bound chlorine (e.g. chloramines produced by free chlorine and ammonia) as well as other electrochemically generated oxidants (e.g. hydrogen peroxide, chlorine dioxide).

Furthermore, the formation of inorganic and organic by-products at mixed oxide electrodes (MOX electrodes) remains marginal to moderate. In practice, however, the physicochemical composition of biologically treated wastewater is often subject to large fluctuation. It is therefore necessary to examine the UV/electrolysis hybrid technology in view of relevant influence factors and limits to deduce its applicability and operation in practice. This topic has not been investigated previously and was therefore in the focus of this study. The influence of limiting factors, such as total suspended solids and initial concentration of the indicator organisms *E. coli*, on bacterial reactivation at lightening and dark conditions was investigated and as a result, safe storage properties as well as application possibilities of the reclaimed wastewater were assessed. Furthermore, it was studied to what extent coverings caused by biofouling processes on quartz glass surfaces, of which sleeves of UV lamps consist, could be reduced or even prevented by the electrochemical formation of total oxidants to ensure a low-maintenance long-term operation of the hybrid module. For this purpose, a rotating annular bioreactor after Lawrence et al. (2000) was applied.

2. Material and methods

2.1. Reagents and chemical analyses

All chemicals used were of reagent grade and could be applied without further purification.

Anion concentrations were measured by an ion chromatograph DX 500 (DIONEX Co., USA) equipped with a conductivity detector and an IonPac AS 19 column (2×250 mm, eluent 20 mM KOH, flow rate 0.25 mL min^{-1}).

The concentrations of calcium, magnesium and iron were determined by ICP/MS (inductively coupled plasma mass spectrometry, Varian Inc., USA).

The DOC (dissolved organic carbon) concentration was measured with the device TOC-V_{CPN} (Shimadzu, Japan).

The TSS concentration was determined according to DIN 38409 H 2.

The photometric determination of total oxidants was carried out by means of *N,N*-diethyl-*p*-phenylene diamine (DPD) method (EN ISO 7393-2) utilizing the UV/VIS photometer Cary 50 Series (Varian Inc., USA). The EN ISO 7393-2 implies the determination of free chlorine and total chlorine at pH values ranging from 6.2 to 6.5. In the case of total chlorine, iodide ions are added to the DPD reagent. These ions reduce chlorine substitution products to free chlorine, so that they are also captured. However, this method proved to be unselective in the presence of other oxidants, such as hydrogen peroxide or peroxodisulphate, being also able to oxidize iodide ions to iodine. Besides chlorine, iodine can also react with the DPD reagent to a red dye. As these and other by-products can occur during the electrochemical disinfection of water, the results of this photometric method were designated as concentration of total oxidants.

The standard deviations of the analytical methods applied were found to be 5% for the DPD method, 5% for the determination of DOC, 10% for the anion analyses (e.g. chloride, etc.) by ion chromatography and 5% for the ICP-MS measurement.

2.2. Preparation of the coliform (*E. coli*) stock suspension and spiking biologically treated wastewater

In order to realize a stable initial bacterial concentration in each assay, it was essential to cultivate coliforms from the sewage and then spike the water with them. The proportion of *E. coli* within the total of coliforms amounted to ca. 50%.

To this end, 0.1 mL of a fresh sewage sample (wastewater treatment plant, Dresden, Germany) was spread on selective agar for coliform germs (MacConkey Agar, Merck, Germany) and incubated 20 h at 37 °C. Some colonies were collected through an inoculating loop and inserted in a nutrient solution consisting of pancreatic peptone and meat (SIFIN, Germany). This solution was kept 5 h in an incubator at 37 °C. The test culture thus created was mixed with glycerine, filled in Greiner tubes and stored at –70 °C. The working culture was produced by adding 1 mL of the test culture to 50 mL of the nutrient broth and incubating it 5 h at 37 °C. Thereafter, 0.1 mL of this solution was spread to an agar plate and grown to a bacterial layer at 36 °C for 24 h (nutrient agar). This layer was washed with a 5 mL solution prepared with 8.5 g NaCl and 20 mL phosphate buffer

(pH = 7.3). This final suspension had a durability of 7 days and contained from $1\text{--}9 \cdot 10^9$ CFU per mL. This bacteria concentrate was spiked to wastewater to get different initial concentrations in the range of approximately $1 \cdot 10^3\text{--}3 \cdot 10^5$ *E. coli* per 100 mL and $2 \cdot 10^3\text{--}5.5 \cdot 10^5$ total coliforms per 100 mL.

2.3. Microbiological analyses

The quantitative determination of the *E. coli* was conducted by means of the Colilert-18/Quanti-Tray procedure (IDEXX, USA).

The determination of the total cell count was carried out by fluorescence microscopy. For this purpose, the fluorescence dye 4,6-diamino-2-phenylindol dihydrochloride (DAPI, Merck KGaA, Germany) was used. The fluorescent cells were examined microscopically utilizing an epifluorescence microscope (Axioskop, Carl Zeiss AG, Germany). 15 counting fields were quantified at 100 \times magnification. After calculation of the mean value, the total cell count was determined.

Living cells with intact cell membranes as well as membrane damaged cells were quantified by means of the LIVE/DEAD[®] Bac Light Kits L 7012 (Invitrogen, Life Technologies Co., USA).

Triplicate measurements of disinfection and reactivation experiments exhibited a good reproducibility of the microbiological methods within a 95% confidence interval.

2.4. Experimental procedures

The continuously operated UV/electrolysis hybrid module (Fig. 1) consisted of an UV flow reactor (UMEX GmbH, Germany) as well as an electrolysis flow cell (galvanostatic conditions). The UV flow reactor contained a 20 W low pressure mercury UV lamp with an UVC efficiency of 32.9% (length = 36 cm, inner radius = 1.9 cm, $V_{\text{irradiated}} = 0.270$ L) and an integrated sensor for measuring the UV irradiance. The UV fluence was calculated from the mean UV irradiance (mean UV intensity) and the contact time. The electrochemical disinfection unit, having been consisted of four MOX electrodes (Ir/Ru mixed oxide on Ti substrate, De Nora GmbH, Germany, $A_{\text{eff, anode}} = A_{\text{eff, cathode}} = 301 \text{ cm}^2$), exhibited a volume of 350 mL.

The reservoir and the collection receptacle had a volume of 10 L.

For the disinfection experiments, wastewater (WW) was taken from a municipal sewage treatment plant in Dresden. Selected chemical parameters of the secondary effluents used in this study are summarized in Table 1.

For the determination of the influence factors and limits of UV/electrolysis hybrid technology, the wastewater specific parameters TSS concentration (initial *E. coli* concentration = const.) and initial *E. coli* concentration (TSS concentration = const.) were examined. These parameters were varied within sensible limits according to real conditions in decentralized sewage treatment plants. Thus, the TSS concentration was adjusted in the range of 11–75 mg L^{–1} utilizing activated sludge and the wastewater (WW 1, $V = 10$ L) was disinfected at UV fluences in the range of 141–704 J m^{–2}.

The influence of the initial bacteria count was examined by varying the *E. coli* concentration within the range of 933–221,

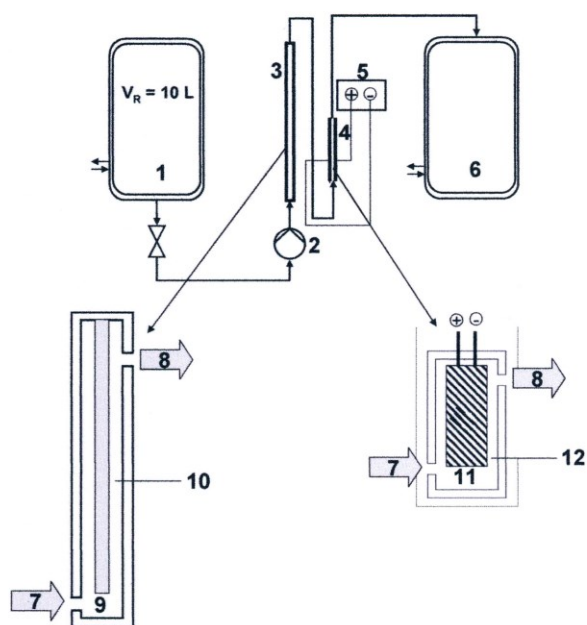


Fig. 1 – Experimental set-up 1 – reservoir ($V_R = 10$ L), 2 – pump, 3 – UV flow reactor, 4 – electrolysis flow cell, 5 – power supply, 6 – collection receptacle, 7 – inlet, 8 – outlet, 9 – low pressure mercury UV lamp (20 W), 10 – UV irradiated volume ($V = 0.270$ L), 11 – MOX electrodes ($A_{\text{eff, anode}} = A_{\text{eff, cathode}} = 301$ cm²), 12 – volume of the electrolysis cell ($V_{\text{Cell}} = 0.35$ L).

100 per 100 mL and treating the wastewater (WW 1, $V = 10$ L) at an UV fluence of 139 J m⁻².

Bacterial reactivation in the UV disinfected, biologically treated wastewater was determined after 48 h at 4200 Lux (photo repair) as well as in darkness (dark repair) at a temperature of 20 °C.

Sampling of UV disinfection and UV reactivation experiments was conducted directly in the effluent of the UV reactor. Sublethal UV fluences ($H = 139$ – 144 J m⁻²) were

applied, since, in practice, the reduction of the lethal UV fluence (≥ 400 J m⁻²) to a sublethal level is often a result of fluctuating, high TSS concentrations of the biologically treated wastewater and coverings (biofouling, scaling) on the quartz sleeves of UV lamps.

The examination of the prevention of photo and dark repair was conducted by treating the UV disinfected wastewater (WW 1, $H = 139$ – 144 J m⁻²) electrochemically (Fig. 1). The influence of the initial *E. coli* concentration was determined at an electrical charge input within a range of 0.0067 – 0.017 Ah L⁻¹ ($j = 1.3$ – 3.3 mA cm⁻²).

The influence of the TSS concentration was determined at an electrical charge input ranged from 0.012 Ah L⁻¹ to 0.067 Ah L⁻¹ ($j = 2.3$ – 13 mA cm⁻²).

Bacterial reactivation in the UV irradiated and electrochemically treated wastewater was determined after 24–168 h at 4200 Lux (photo repair) as well as in darkness (dark repair) at a temperature of 20 °C.

Sampling of UV/electrolysis disinfection and reactivation experiments was conducted directly in the effluent of the UV/electrolysis hybrid reactor.

Furthermore, the energy consumption was calculated.

Biofilm growth on quartz glass surfaces was studied in a rotating annular bioreactor (RAB, Fig. 2).

For this purpose, electrochemically produced total oxidants were added to the wastewater WW 2 to adjust a concentration of 1 – 1.5 mg L⁻¹ and 9.5 – 10 mg L⁻¹. For comparison, biofilm growth on quartz glass surfaces in absence of electrochemically produced oxidants was additionally investigated. The adjustment of the concentration of total oxidants was conducted by using an electrochemically produced stock solution (WW 2, $c_{\text{total oxidants}} = 165$ – 225 mg L⁻¹). Furthermore, the wastewater in the rotating annular bioreactor was changed weekly and spiked with coliforms to realize a total cell count of $1 \cdot 10^6$ per mL on average. Monthly, one quartz glass slide was removed from the inner cylinder of the bioreactor and replaced by another to ensure comparable hydrodynamic conditions. The biofilm was removed from the quartz glass slide utilizing a cell scraper, then dissolved in 5 mL of phosphate buffered NaCl solution, homogenized by means of an ultrasound probe (3·10 s, 30% performance, in

Table 1 – Chemical parameters of the applied secondary effluents.

Chemical parameter	WW 1	WW 2
Conductivity in $\mu\text{S cm}^{-1}$	1170	1200
$c_{\text{total suspended solids}}$ in mg L ⁻¹	6	8
Transmittance at 254 nm in % ^a	66	64
pH	7.3	7.5
$c_{\text{dissolved organic carbon}}$ in mg L ⁻¹	9.1	11
c_{chloride} in mg L ⁻¹	140	146
c_{sulphate} in mg L ⁻¹	141	157
c_{nitrite} in mg L ⁻¹	nd	nd
c_{nitrate} in mg L ⁻¹	13	89
$c_{\text{phosphate}}$ in mg L ⁻¹	0.3	0.5
$c_{\text{free chlorine}}$ in mg L ⁻¹	nd	nd
$c_{\text{total oxidants}}$ in mg L ⁻¹	nd	nd

nd – not detectable.

WW – biologically treated wastewater.

^a Unfiltered WW.

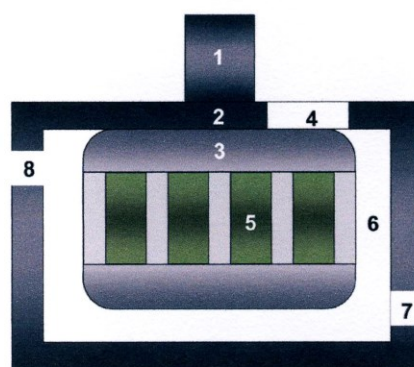


Fig. 2 – Design of the rotating annular reactor. 1 motor. 2 outer cylinder. 3 inner cylinder. 4 opening (lidded). 5 quartz glass slides. 6 wastewater. 7 inlet. 8 outlet.

each case 10 s pause) and characterized by the total cell number and the transmittance at 254 nm. Furthermore, the oxygen saturation and the pH value were measured in the reservoir, since they constitute important parameters in the bacterial vitality and activity. The total duration of the experiment amounted to five and a half months. After this time, coverings on the quartz glass surfaces were further analyzed in view of its inorganic composition (Ca, Mg, Fe).

3. Results and discussion

3.1. Influence factors and limits of the UV/electrolysis hybrid technology

3.1.1. Influence of the concentration of total suspended solids (TSS) at constant *E. coli* concentration

Microorganisms can be adsorbed on or embedded in particles being mainly introduced into the disinfection stage by abrasion of activated sludge. As a result of the protection of microorganisms by particles, disinfection capacity is decreased significantly (Fig. 3).

At an UV fluence of 300 J m^{-2} , a complete removal of *E. coli* (5.6 log levels) occurred at a TSS concentration of 11 mg L^{-1} , whereas the *E. coli* reduction was lowered to 4.0 log levels at a TSS concentration of 75 mg L^{-1} indicating an incomplete removal of *E. coli*. The disinfection curves reach a plateau at TSS concentrations of $\geq 17 \text{ mg L}^{-1}$ ($H > 400 \text{ J m}^{-2}$) characterizing the maximal attainable log level of the *E. coli* reduction. That means, a further increase of UV fluence ($H > 400 \text{ J m}^{-2}$) at TSS concentrations of $\geq 17 \text{ mg L}^{-1}$ cannot ensure a complete removal of *E. coli*.

The plot of the TSS concentration vs. the maximal attainable log level of the *E. coli* reduction shows a linear correlation (insert of Fig. 3). Due to the protection effect, *E. coli* bacteria were only reversibly damaged with the consequence that a

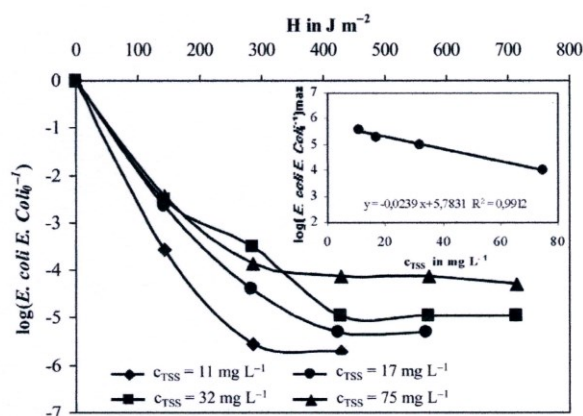


Fig. 3 – Influence of the concentration of total suspended solids (TSS) on the UV induced *E. coli* reduction (WW 1, $H = 141\text{--}704 \text{ J m}^{-2}$, $c_{\text{TSS}} = 11\text{--}75 \text{ mg L}^{-1}$, $E. coli_0 = 305,400$ in 100 mL). Insert: Maximal attainable log level reduction of *E. coli* in dependence on the TSS concentration (WW 1, $H = 423\text{--}704 \text{ J m}^{-2}$, $c_{\text{TSS}} = 11\text{--}75 \text{ mg L}^{-1}$).

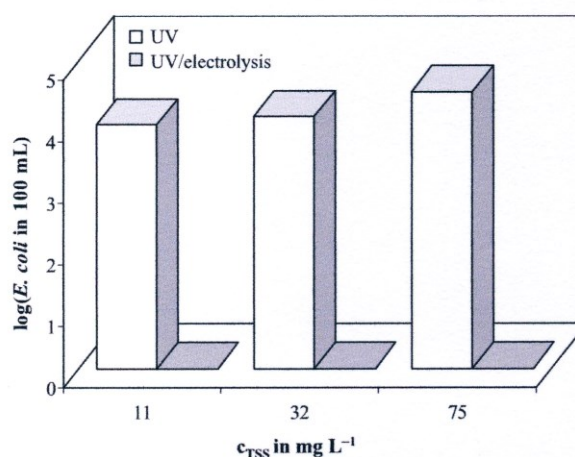


Fig. 4 – Photo repair of *E. coli* (WW 1, $E = 4200 \text{ Lux}$, 48 h) after UV irradiation ($H = 144 \text{ J m}^{-2}$) and after UV/electrolysis (WW 1, $H = 144 \text{ J m}^{-2}$, $Q_0 = 0.012\text{--}0.067 \text{ Ah L}^{-1}$, $j = 2.3\text{--}13 \text{ mA cm}^{-2}$) in dependence on the TSS concentration.

reactivation of $4.2\text{--}5 \text{ log levels}$ was observed after 48 h at a light intensity of 4200 Lux (Fig. 4).

In contrast, the combination of UV irradiation and electrolysis avoids bacterial reactivation in the reclaimed wastewater within a wide TSS concentration range of $11\text{--}75 \text{ mg L}^{-1}$ (Fig. 4).

However, the need of total oxidants for the prevention of photo repair increases linearly with rising TSS concentration (Fig. 5).

This is the result of an increasing consumption of total oxidants through the particles. Thus, a total oxidants concentration of 0.6 mg L^{-1} is necessary at a TSS concentration of 11 mg L^{-1} , whereas a total oxidants concentration of

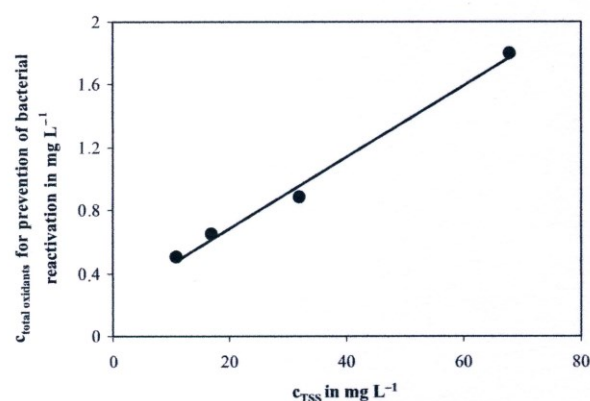


Fig. 5 – Minimum concentration of electrochemical produced total oxidants (WW 1, $Q_0 = 0.012\text{--}0.067 \text{ Ah L}^{-1}$, $j = 2.3\text{--}13 \text{ mA cm}^{-2}$) to prevent reactivation of *E. coli* ($E = 4200 \text{ Lux}$, $24\text{--}168 \text{ h}$) after UV irradiation ($H = 144 \text{ J m}^{-2}$) in dependence on the TSS concentration.

1.8 mg L⁻¹ is required at a TSS concentration of 75 mg L⁻¹. Thereby, the requirement of total oxidants triples when the TSS concentration rises by a factor of 6.8. The rising need of total oxidants can be realized by an increase of the electric charge input from 0.012 to 0.067 Ah L⁻¹. The increase in the desired concentration of total oxidants for prevention of bacterial reactivation illustrates that the concentration of total suspended solids is a limiting factor for the UV/electrolysis hybrid technology.

On the one hand, it is not possible to indefinitely increase the electric charge input due to specific water parameters (conductivity of wastewater) and operating conditions (stability of the electrodes, power supply equipment). On the other hand, the resulting increase of energy costs confines the practical applicability of UV/electrolysis hybrid technology. Furthermore, a high concentration of total oxidants can induce the decomposition of high molecular weight compounds to low molecular weight compounds representing better nutritive substances for bacteria which leads to a reproduction of coliforms. Therefore, even a concentration of total oxidants of 2 mg L⁻¹ at a TSS concentration of 75 mg L⁻¹ was insufficient to inhibit regrowth of total coliforms (except for *E. coli*) which amounted to 6 log levels even after 7 days (data here not shown). Compared to that, experimental examinations at lower TSS concentrations ($c_{TSS} = 11\text{--}32\text{ mg L}^{-1}$) have shown that total oxidants in a concentration of 0.6–1.0 mg L⁻¹ are sufficient to prevent regrowth of total coliforms.

3.1.2. Influence of the initial *E. coli* concentration at constant TSS concentration

The influence of the initial *E. coli* concentration on the extent of the sublethal effect of UV irradiation was examined by reactivation experiments at lightening (4200 Lux) and dark conditions (Fig. 6).

Fig. 6 shows that the number of reactivated *E. coli* increases almost linearly with increasing bacterial density. An increase

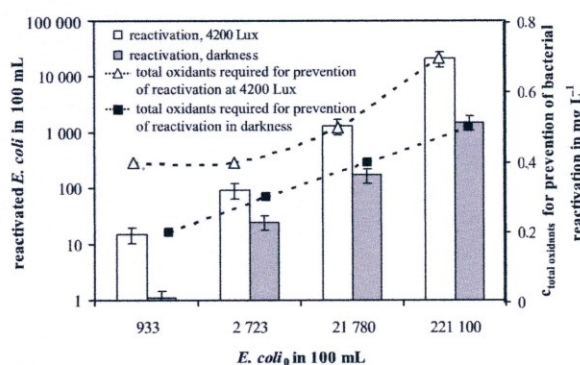


Fig. 6 – Light and dark repair of *E. coli* ($E = 0$, 4200 Lux, 48 h) after UV irradiation (primary y-axis, WW 1, $H = 139\text{ J m}^{-2}$) as well as the minimum concentration of electrochemically produced total oxidants (secondary y-axis, $Q_w = 0.0067\text{--}0.017\text{ Ah L}^{-1}$, $j = 1.3\text{--}3.3\text{ mA cm}^{-2}$) required to prevent *E. coli* reactivation in dependence on the initial bacterial concentration ($c_{TSS} = \text{constant} = 13\text{ mg L}^{-1}$).

of the initial *E. coli* concentration by almost one log level leads to an identical increase of the extent of photo and dark repair. In general, bacterial reactivation is reduced by 1.4–1.6 log levels in darkness compared to lightening conditions.

The enhancement of the number of reversibly damaged bacteria (suitable for reactivation) with an increase of the initial *E. coli* concentration in the reclaimed wastewater requires an increased concentration of total oxidants to avoid bacterial reactivation (Fig. 6). Exposing them to a light intensity of 4200 Lux, total oxidants in a concentration of 0.4 mg L⁻¹ are necessary at an initial concentration of 933 *E. coli* per 100 mL, whereas total oxidants in a concentration of 0.67 mg L⁻¹ are required when the *E. coli* concentration rises by 2.4 log levels. In darkness, the concentration of total oxidants rises from 0.2 mg L⁻¹ to 0.5 mg L⁻¹ when the bacterial count increases by 2.4 log levels. In general, a 25–50% lower concentration of total oxidants is required to avoid dark repair compared to the prevention of photo repair.

3.2. Prevention of biofouling

Since biofouling induced coverings on quartz sleeves of UV lamps (Geesey et al., 1993; Flemming, 1991; Popp et al., 1998b) reduce the UV disinfection capacity and support bacterial reactivation in wastewater, the preventive minimization or, in the best case, the avoidance of the formation of coverings is required to ensure a reliable and a low-maintenance long-term operation of the hybrid reactor. Against this background, biofilm formation on quartz glass slides integrated in a rotating annular bioreactor (RAB) was investigated. For this purpose, the bioreactor was operated with oxidant-free, biologically treated wastewater (WW 2, RAB 1) as well as with oxidant containing, biologically treated wastewater (WW 2, RAB 2: $c_{\text{total oxidants}} = 1\text{ mg L}^{-1}$ on average, RAB 3: $c_{\text{total oxidants}} = 10\text{ mg L}^{-1}$ on average). The oxygen saturation amounted to 82–100%. The pH value varied between 7.3–7.5. Both parameters thus did not constitute limiting factors of the biofilm formation. Furthermore, biofilm formation was characterized by the transmittance at 254 nm which is a decisive influence factor of the UV irradiance and therefore also of the UV disinfection capacity.

The long term experiment took 5.5 months.

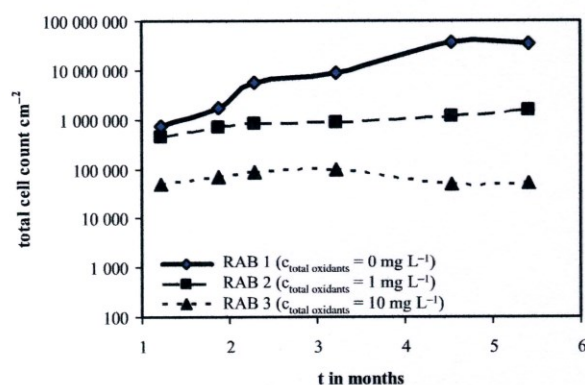


Fig. 7 – Time course of total cell count on quartz glass surfaces (WW 2, $c_{\text{total oxidants}} = 0, 1\text{ and }10\text{ mg L}^{-1}$).

Already after 4 weeks, slides in the RAB 1 without total oxidants were covered by a biofilm. The total cell count amounted to $9.4 \cdot 10^5$ per cm^2 . The transmittance at 254 nm was 79%. At the same time, no biofilm formation was observed on the slides being in contact with total oxidants (RAB 2 and 3). The surfaces with total oxidants in a concentration of 1 mg L^{-1} showed a total cell count of $2.1 \cdot 10^5$ per cm^2 as well as a transmittance of 92%. For comparison, a total cell count of $2 \cdot 10^4$ per cm^2 was observed on the surfaces with total oxidants in a concentration of 10 mg L^{-1} as well as a transmittance of 98%. The bacteria did not produce a biofilm in this case.

The total cell count on the slides submerged in oxidant-free wastewater reached a maximal value of $35 \cdot 10^6$ per cm^2 after 4.5 months (Fig. 7).

At the same time, the transmittance decreased to 50% (Fig. 8).

After 5.5 months the transmittance value was reduced by further 10%. Compared to that, the total cell count on the slides submerged in wastewater with total oxidants concentrations of 1 mg L^{-1} and 10 mg L^{-1} was 1–2 log levels lower than the total cell count on the slide in oxidant-free water. This is due to the lysis of bacterial cells.

The increase of the total cell count over the 5.5 month experiment duration was low to negligible. In addition to that, the transmittance was reduced to merely 62% ($c_{\text{total oxidants}} = 1 \text{ mg L}^{-1}$) or 66% ($c_{\text{total oxidants}} = 10 \text{ mg L}^{-1}$) after 4 months and remained constant for further 1.5 months. This can be attributed to a minimal tarnishing of the slides caused by dirt particles and minor scaling. Calcium ($12\text{--}12.9 \mu\text{g}$), magnesium ($1.3\text{--}1.7 \mu\text{g}$) and iron ($1.1\text{--}1.3 \mu\text{g}$) could be observed in minor amounts on the slides being in contact with oxidant containing wastewater. On the slides in oxidant-free water, a slightly higher calcium and iron accumulation ($32 \mu\text{g}$ and $23 \mu\text{g}$, respectively) was observed. In general, inorganic fouling (scaling) can be considered to be low under the investigated conditions, particularly on slides in oxidant containing wastewater. Therefore, the focus in this study has been set to further intensive examinations related to biofouling. In particular, the oxidative, and therefore

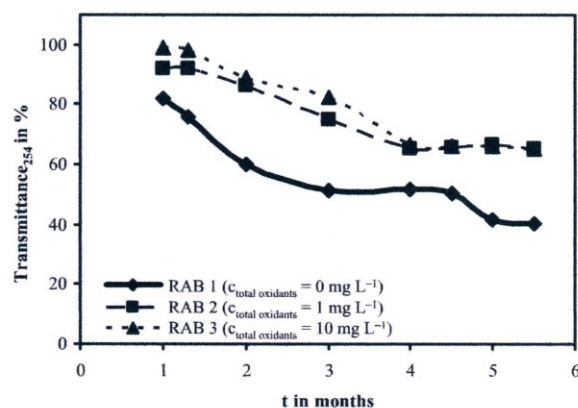


Fig. 8 – Time course of transmittance at 254 nm (quartz glass surfaces, WW 2, RAB 1, 2 and 3, $c_{\text{total oxidants}} = 0, 1$ and 10 mg L^{-1}).

membrane damaging, effect of germicides was analyzed by comparing the proportion of cells with damaged and intact membranes. It has become apparent that the proportion of membrane-damaged bacteria in relation to the total cell count was considerably higher on the slides being in contact with oxidants than on the slides in oxidant-free wastewater (Fig. 9).

The number of membrane-damaged bacteria was comparable to that of the total cell count. The number of membrane-intact cells on the slides in oxidant containing wastewater ($c_{\text{total oxidants}} = 1 \text{ mg L}^{-1}$) amounted to just 0.6% of the total cell count. The same result was observed at a concentration of total oxidants of 10 mg L^{-1} (data here not shown). Due to these results, biofilm formation is not to be expected, even after prolonged experiment duration, since it implies active (metabolic), undamaged cells.

As a conclusion, it can be stated that biofilm formation on quartz glass surfaces can be inhibited by the electrochemical production of total oxidants. After 5.5 months no biofouling was observed on the slides being in contact with total oxidants in concentrations of 1 mg L^{-1} and 10 mg L^{-1} , respectively. However, due to the reduced transmittance, a reduction of the UV irradiance and thus of the UV disinfection capacity cannot be excluded. However, this could be compensated by the electrolysis unit of the hybrid reactor (electrochemical generation of total oxidants to increase the UV disinfection capacity).

The presented results lead to the conclusion that the quartz sleeves of UV lamps should regularly brought in contact with total oxidants in a concentration of at least 1 mg L^{-1} to enhance the cleaning intervals of the UV/electrolysis hybrid reactor, thereby ensuring a low-maintenance long-term operation. This can be routinely realized over night, when the UV reactor does not operate. During this time, the UV reactor could be filled with a solution of total oxidants being released upon the UV reactor returns to operation.

4. Conclusions

UV irradiation is an efficient method in the disinfection of biologically treated wastewater characterized by high quality in view of physico-chemical parameters ($T > 60^\circ\text{C}$;

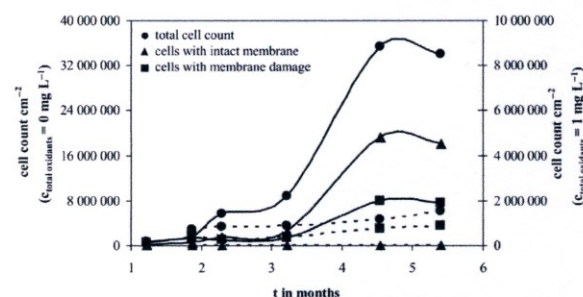


Fig. 9 – Time course of total cell count as well as the number of membrane-intact and membrane-damaged cells on quartz glass surfaces without total oxidants (solid lines, primary y-axis, RAB 1, WW 2) and with total oxidants (broken lines, secondary y-axis, $c_{\text{total oxidants}} = 1 \text{ mg L}^{-1}$, RAB 2, WW 2).

Table 2 – Process parameters of the UV/electrolysis hybrid reactor in dependence on the main limiting specific water parameters TSS and Transmittance₂₅₄ for the reclamation of storable wastewater (20 W low pressure mercury lamp, $V_{\text{irradiated}} = 0.27 \text{ L}$, $H \geq 400 \text{ J m}^{-2}$, $I = 5 \text{ A}$, $U = 10 \text{ V}$, Ir/Ru mixed oxide electrodes: $A_{\text{eff, anode}} = A_{\text{eff, cathode}} = 301 \text{ cm}^2$, $V_{\text{electrolysis cell}} = 0.35 \text{ L}$).

$C_{\text{total suspended solids}}$ [mg L ⁻¹]	Transmittance at 254 nm [%]	$C_{\text{total oxidants}}$ [mg L ⁻¹]	Q_v [Ah L ⁻¹]	Flow rate [L h ⁻¹]	E [kWh m ⁻³]
11	59–65	0.6	0.012	417	0.17
32	40–45	0.9	0.017	294	0.24
75	30–35	1.8	0.067	75	0.94

Q_v – electric charge input normalized to the volume of the electrolysis cell.

E – energy consumption of the UV/electrolysis hybrid reactor.

$C_{\text{TSS}} < 17 \text{ mg L}^{-1}$). Especially, the TSS concentration as well as the initial concentration of coliforms (*E. coli*) constitute limiting parameters. Microorganisms can, to a relevant extent, be adsorbed on or incorporated into particles introduced in the disinfection stage by the abrasion of activated sludge. Furthermore, particles absorb and/or disperse the radiation leading generally to a reduction of the UV irradiance affecting the bacteria. Due to diminished UV fluences, the protection of the particles as well as biofouling and scaling-induced coverings on the quartz sleeves of the UV lamps lead to a reduction of the UV disinfection capacity, on the one hand and to a reversible damage implying the reactivation of *E. coli* (total coliforms) by photo and dark repair processes, on the other. The consequence is an undesired, enhanced bacteria concentration in reclaimed wastewater.

The supplementation of the UV disinfection with the electrolysis unit ensures a reliable, sustained bacterial reduction and prevents the reactivation of reversibly damaged coliforms.

Even at a high TSS concentration of 75 mg L^{-1} , the reactivation of *E. coli* ($C_{\text{total oxidants}} = 1.8 \text{ mg L}^{-1}$) and, up to a TSS-concentration of 32 mg L^{-1} , the reactivation of total coliforms (except *E. coli*, $C_{\text{total oxidants}} = 1.0 \text{ mg L}^{-1}$) can be prevented at a high initial germ concentration of $2\text{--}3 \cdot 10^5$ per 100 mL. UV/electrolysis hybrid technology is limited by the increase of the total oxidants concentration required for the prevention of bacterial reactivation with rising TSS concentrations and a rising initial bacterial concentration which results in an increase of the required electric charge input. The process design of the hybrid reactor should therefore be realized via the electrolysis unit. The enhancement of the electric charge input can be achieved by a reduction in the flow rate at a constant current, on the one hand and by an increase of the current at a constant flow rate, on the other. The former will lead to an enhancement of the UV fluence ($H > 400 \text{ J m}^{-2}$), however, not to an increase of the UV disinfection capacity (Fig. 3, stagnation of the UV disinfection capacity can be compensated by the electrolysis unit). The latter is unfavourable in view of the fact that the current density constitutes a limiting electrode parameter, on the one hand and the enhancement of the current causes an increase of the resulting voltage and thus higher energy consumption, on the other. As a result, the increase of the electric charge input should be realized by the reduction of the flow rate (Tab. 2).

The investigation results show that the limits of UV/electrolysis hybrid technology are only reached in conjunction with very high TSS concentrations which in practice solely

exist in poorly functioning sewage treatment plants. At a TSS concentration ranged from $\leq 11 \text{ mg L}^{-1}$ to 32 mg L^{-1} , the UV/electrolysis hybrid technology constitutes an energy efficient method ($0.17\text{--}0.24 \text{ kWh m}^{-3}$) in reclamation of wastewater, whereby its safe storage is ensured. High operational safety combined with high maintenance intervals are ensured by contacting the quartz sleeves of the UV lamps with electrochemically produced total oxidants, since the formation of biofilms can be prevented by total oxidants even in a concentration of 1 mg L^{-1} .

Acknowledgements

The authors thank the European Regional Development Fund and the Free State of Saxony for the financial support of this project.

REFERENCES

- Bergmann, M.E.H., Rollin, J., 2007. Product and by-product formation in laboratory studies on disinfection electrolysis of water using boron-doped diamond anodes. *Catal. Today* 124, 198–203.
- Deborde, M., von Gunten, U., 2008. Reactions of chlorine with inorganic and organic compounds during water treatment – kinetics and mechanisms: a critical review. *Water Res.* 42, 13–51.
- Flemming, H.C., 1991. Biofilms as a particular form of microbial life. In: Flemming, H.-C., Geesey, G.G. (Eds.), *Biofouling and Biocorrosion in Industrial Water Systems*. Springer Publishing House, Heidelberg, pp. 1–6.
- Geesey, G., Lewandowski, Z., Flemming, H.C., 1993. *Biofouling and Biocorrosion in Industrial Water Systems*. Lewis Publishers, USA.
- Haaken, D., Dittmar, T., Schmalz, V., Worch, E., 2012. Influence of operating conditions and specific water parameters on the electrochemical bulk disinfection of biologically treated sewage at boron-doped diamond (BDD) electrodes. *Desalin. Water Treat.* 46, 160–167.
- Haaken, D., Schmalz, V., Dittmar, T., Worch, E., 2013. Limits of UV disinfection: UV/electrolysis hybrid technology as a promising alternative for direct reuse of biologically treated wastewater. *J. Water Supply Res. Technol. – Aqua.* 62, 442–451.
- Jefferson, B., Laine, A.L., Stephenson, T., Judd, S.J., 2001. Advanced biological unit processes for domestic water recycling. *Water Sci. Technol.* 43, 211–218.

- Lawrence, J.R., Swerhone, G.D.W., Neu, T.R., 2000. A simple rotating annular reactor for replicated biofilm studies. *J. Microbiol. Meth.* 42, 215–224.
- Lazarova, V., Savoye, P., Janex, M.L., Blatchley III, E.R., Pommepuy, M., 1999. Advanced wastewater disinfection technologies: state of the art and perspectives. *Water Sci. Technol.* 40, 203–213.
- Lindenauer, K.G., Darby, J.L., 1994. Ultraviolet disinfection of wastewater: effect of dose on subsequent photoreactivation. *Water Res.* 28, 805–817.
- Oguma, K., Katayama, H., Mitani, H., Morita, S., Hirata, T., Ohgaki, S., 2001. Determination of pyrimidine dimers in *Escherichia Coli* and *Cryptosporidium parvum* during UV light inactivation, photoreactivation, and dark repair. *Appl. Environ. Microbiol.* 67 (10), 4630–4637.
- Popp, W., 1998a. Disinfection of secondary effluents from sewage treatment plants – requirements and applications. *Eur. Wat. Man.* 1, 27–31.
- Popp, W., Huber, S., Gierig, M., Manz, W., 1998b. In situ-characterisation of Bacterial Coverings on Quartz Sleeves of UV Reactors in the Effluent of Wastewater Treatment Plants. In: *Munich contributions to Wastewater, Fishing and River Biology*. Oldenbourg Publishing House, pp. 73–78.
- Queck, P., Hu, J., 2008. Indicators for photoreactivation and dark repair studies following ultraviolet disinfection. *J. Ind. Microbiol. Biotechnol.* 35, 533–541.
- Rajala, R.L., Pulkkanen, M., Pessi, M., Heinonen-Tanski, H., 2006. Removal of microbes from municipal wastewater effluent by rapid sand filtration and subsequent UV irradiation. *Water Sci. Technol.* 47, 157–162.
- Schmalz, V., Dittmar, T., Haaken, D., Worch, E., 2009. Electrochemical disinfection of biologically treated local sewage by using boron doped diamond (BDD) electrodes – contribution for direct reuse of domestic wastewater. *Water Res.* 43, 5260–5266.
- USEPA, 2004. Guidelines for Water Reuse. EPA/625/R-04/108. Office of Research and Development, Cincinnati.
- WHO, 1989. Health Guidelines for the Use of Wastewater in Agriculture and Aquaculture. Technical Report Series No. 778, Geneva.
- Zimmer, J.L., Slawson, R.M., 2002. Potential repair of *Escherichia Coli* DNA following exposure to UV radiation from both medium- and low-pressure UV sources used in drinking water treatment. *Appl. Environ. Microbiol.* 68, 3293–3299.

4. Zusammenfassung der Ergebnisse und Diskussion

In der vorliegenden Dissertation wurden die Verfahren Elektrolyse und UV/Elektrolyse als mögliche alternative Desinfektionsmethoden zur dezentralen Gewinnung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser untersucht. In diesem Zusammenhang wurde zunächst die elektrochemische Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser unter Verwendung einer kontinuierlich betriebenen Durchflusszelle, in der vier Dünnschicht-BDD-Elektroden integriert waren, bei einem volumenspezifischen elektrischen Ladungseintrag von 0,1...0,15 Ah L⁻¹ und mit einer anschließenden Nachwirkzeit von 4...20 min untersucht. Nachdem festgestellt wurde, dass der verfahrensspezifische Parameter Volumenstrom im Bereich von 25...125 L h⁻¹ keine erheblichen Auswirkungen auf die Produktionsrate des Hauptdesinfektionsmittels freies Chlor (Konzentration des freien Chlors normiert auf den volumenspezifischen elektrischen Ladungseintrag) mit 24...30 mg (Ah)⁻¹ hat, wurde der Fokus vor allem auf die Ermittlung des Einflusses verschiedener abwasserspezifischer Parameter, wie DOC-Gehalt, pH-Wert und Temperatur, gelegt, da der derzeitige Kenntnisstand hierzu unzureichend ist. Dabei wurden die abwasserspezifischen Parameter innerhalb sinnvoller Grenzen, die sich an den Realbedingungen in Kleinkläranlagen orientierten, variiert. Es wurde festgestellt, dass der ct-Wert mit zunehmender Temperatur verringert und somit die Effektivität des freien Chlors innerhalb der Desinfektion erhöht wird. So ist der durchschnittliche ct-Wert für eine *E. coli*-Reduktion von 5 log-Stufen bei einer Temperatur von 20 °C um das Dreifache (6 mg min L⁻¹) höher als der ct-Wert bei 30 °C (2 mg min L⁻¹). Für die Reduktion der *E. coli* um eine log-Stufe beträgt der durchschnittliche ct-Wert bei 6 °C 7 mg min L⁻¹, dagegen bei 20 °C 3 mg min L⁻¹. Die erhöhte Desinfektionsleistung bei hohen Temperaturen ist vermutlich vor allem auf eine bessere Stoffwechseltätigkeit der Bakterien und damit optimale Wirkung des freien Chlors zurückzuführen. Bei tiefen Temperaturen dagegen schränken Bakterien ihre Stoffwechseltätigkeit deutlich ein. Es sind weiterhin Schutzhüllenbildungen möglich. Damit kann das freie Chlor nur schwer in die Bakterien vordringen bzw. nur sehr eingeschränkt wirken. Die chemische Zusammensetzung des freien Chlors ist bei diesen Temperaturen vergleichbar und demzufolge keine Erklärung für die erhöhte Effektivität des freien Chlors bei hohen Temperaturen. Weiterhin zeigten die Untersuchungen zum Einfluss des pH-Wertes (pH = 5,7...8,5; T = 20 °C), dass die Desinfektion mit zunehmenden pH-Wert verlangsamt wird und damit die Nachwirkzeit zunimmt. Dies äußerte sich unter anderem in einem um den Faktor 3 höheren ct-Wert (*E. coli*-Reduktion von 4 log Stufen) unter schwach basischen im Vergleich zu schwach sauren Bedingungen. Eine weitere Erhöhung des pH-Wertes auf 8,5 erzielte lediglich eine Desinfektionsleistung von 2,6 log-Stufen selbst nach 12 min Nachwirkzeit. Dies ist mit einer Zunahme des Anteils von Hypochlorit an freiem Chlor zu erklären. Dabei ist die germizide Wirkung des Hypochlorits 80 mal geringer als die der hypochlorigen Säure. Weiterhin zeigte sich in den Untersuchungen zum Einfluss des DOC-Gehaltes, dass

die Desinfektionsleistung von annähernd 4 log-Stufen auf 1,7 log-Stufen abnimmt, wenn sich der DOC-Gehalt von 9 mg L⁻¹ auf 22 mg L⁻¹ mehr als verdoppelt (Nachwirkzeit = 20 min). Dies ist auf eine Verringerung der Konzentration des freien Chlors von 0,5 mg L⁻¹ auf 0,14 mg L⁻¹ aufgrund der erhöhten Chlorzehrung zurückzuführen.

Anhand der Untersuchungsergebnisse lässt sich prinzipiell die elektrochemische Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser als effizientes Desinfektionsverfahren bei Temperaturen von > 6 °C, einem pH-Wert von < 8,5 und einem DOC-Gehalt von < 22 mg L⁻¹ einstufen. Unter diesen Bedingungen lässt sich eine *E. coli*-Reduktion von 4 log-Stufen bei einer Nachwirkzeit von 15...20 min erzielen. Selbst bei einer hohen Ausgangskonzentration von annähernd 10⁵ *E. coli* pro 100 mL erfüllt das erzeugte Brauchwasser die Qualitätsanforderungen für eine Vielzahl von Nutzungsarten innerhalb der landwirtschaftlichen Bewässerung, von innerstädtischen Anwendungen sowie der Freizeitnutzung. Zudem werden die Anforderungen der Ablaufklasse +H (100 Fäkalcoliforme (*E. coli*) pro 100 mL) erfüllt. Anhand der ermittelten ct-Werte könnte zwar die Desinfektionsleistung charakterisiert und je nach gewünschter Brauchwasserqualität gesteuert werden, jedoch stellen niedrige Temperaturen, hohe pH-Werte, hohe DOC-Gehalte sowie ein hoher Energieverbrauch von 2...2,6 kWh m⁻³ limitierende Parameter dieses Verfahrens unter Einsatz von Dünnfilm-BDD-Elektroden dar. Weiterhin erweist sich die Bildung von Chlorat und Perchlorat aufgrund ihrer humantoxischen Wirkung als nachteilig. So übersteigt die Chloratkonzentration mit 1,3 mg L⁻¹ den von der WHO empfohlenen Grenzwert von 0,7 mg L⁻¹ (WHO, 2008). Auch die Konzentration von Perchlorat ist mit 18 mg L⁻¹ als kritisch einzuschätzen. Die AOX- und THM-Konzentration erweist sich dagegen als marginal bis moderat. Es stellte sich daher die Frage, ob diese Nachteile innerhalb einer Verfahrenskombination kompensiert werden können. Der pH- und Temperatureinfluss auf die Desinfektionsleistung kann durch die Verfahrenskombination aus UV-Bestrahlung und Elektrolyse kompensiert werden, da allgemein bekannt ist, dass die UV-Bestrahlung als primäres Desinfektionsverfahren weder pH-, noch temperaturabhängig ist. Die UV-Bestrahlung stellt zwar eine effiziente Desinfektionsmethode ($C_{TSS} \leq 20$ mg L⁻¹ und Transmission ≥ 55 %) bei geringen Investitions- und Betriebskosten dar und lässt sich zudem sehr gut mit anderen Desinfektionsverfahren kombinieren, jedoch ist eine sichere Wiederverwendung von UV-behandeltem, biologisch gereinigtem Abwasser aufgrund der Reaktivierung reversibel UV-geschädigter Pathogene fragwürdig. Vor diesem Hintergrund wurden zunächst verschiedene Einflussparameter (pH-Wert, Temperatur, Lichtintensität) auf die Reaktivierung reversibel UV-geschädigter *E. coli* ermittelt. Dabei zeigten die Untersuchungen zum Lichteinfluss, dass das Ausmaß der *E. coli*-Reaktivierung mit zunehmender Lichtintensität steigt. So war die *E. coli*-Reaktivierung bei 470 Lux um den Faktor 1,5...3,5 niedriger als bei 4200 Lux ($t = 1...48$ h). Im Dunkeln war das Ausmaß der Reaktivierung mit maximal 2,7 log-Stufen am schwächsten und bei 4200 Lux mit maximal 4,3 log-Stufen am stärksten

ausgeprägt ($t = 24 \dots 48$ h). Weiterhin wurde festgestellt, dass sich die *E. coli*-Reaktivierung mit zunehmender Temperatur erhöht. Diese war bei 10°C sowohl im Licht als auch im Dunkeln am schwächsten ausgeprägt. Bei 4200 Lux war das Ausmaß der *E. coli*-Reaktivierung um 1,3 log-Stufen und im Dunkeln um 1,6 log-Stufen geringer als bei 30°C . Bei 20°C und 30°C erfolgte die Reaktivierung in einem vergleichbaren Ausmaß, wobei dieses wiederum im Dunkeln um den Faktor 1,2...1,5 geringer als im Licht ausgeprägt war. Dies lässt sich mit der Tatsache, dass die Dunkel- als auch Photoreaktivierung enzymatische Prozesse sind und somit deren Reaktionsgeschwindigkeit mit zunehmender Temperatur steigt, erklären. Zudem ist die Bildung der Enzym-Dimer Komplexe, die Voraussetzung für die Photoreparatur der *E. coli*-DNA sind, u. a. temperaturabhängig. Je höher die Temperatur ist, desto bevorzugter und schneller werden diese gebildet. Weiterhin wurde kein Einfluss des pH-Wertes im untersuchten Bereich von 5,7...8,1 auf die *E. coli*-Reaktivierung beobachtet, was sich in einem vergleichbaren Ausmaß der Photo- (4,0...4,2 log-Stufen) und Dunkelreaktivierung der *E. coli* (3,0...3,3 log-Stufen) äußerte.

Anhand dieser Ergebnisse wird deutlich, dass die unerwünschte bakterielle Reaktivierung in UV-behandeltem Abwasser selbst bei niedrigen Temperaturen, stark schwankenden pH-Werten und geringen Lichtintensitäten bzw. im Dunkeln in einem Ausmaß stattfindet, so dass eine sichere Wiederverwendung als Brauchwasser ausgeschlossen ist. Der Minimierung der Reaktivierungsprozesse kann zwar durch Erhöhung der UV-Bestrahlungsdosis begegnet werden. Jedoch wird dies durch hohe TSS-Konzentrationen limitiert. Ab einer TSS-Konzentration von 17 mg L^{-1} wird, trotz hoher UV-Bestrahlungsdosen von $> 400\text{ J m}^{-2}$, keine vollständige *E. coli*-Reduktion erzielt. Hohe Partikelkonzentrationen (bei einem hohen Anteil an Belebtschlammpartikeln mit einer Größe von $> 10 \dots 20\text{ }\mu\text{m}$, der für biologisch gereinigtes Abwasser charakteristisch ist) führen in der Praxis nicht nur zum verbesserten Schutz der Bakterien selbst bei hohen UV-Bestrahlungsdosen, sondern auch zur Verringerung einer letalen UV-Bestrahlungsdosis zu einer subletalen Dosis, die zudem durch Beläge (Biofouling, Scaling) auf den Quarzhüllrohren der UV-Strahler verursacht werden kann. Dies erhöht die Gefahr der reversiblen Schädigung und somit der Reaktivierung von Fäkalcoliformen, welche bei der Beurteilung der Eignung von UV-bestrahltem, biologisch gereinigtem Abwasser zur Wiederverwendung als Brauchwasser stets eine wichtige Rolle spielt. Würde es gelingen, die bakterielle Reaktivierung auch bei stark schwankenden Einflussparametern zu minimieren oder sogar auszuschalten, könnte dies zu einer sicheren Wiederverwendung des biologisch gereinigten Abwassers beitragen. Daher wurde weiterhin untersucht, ob elektrochemisch erzeugte Germizide zur Vermeidung der Reaktivierungsmechanismen geeignet sind. In diesem Zusammenhang stellte sich zudem die Frage, ob der hohe Energieverbrauch der Elektrolyseeinheit von $2 \dots 2,6\text{ kWh m}^{-3}$, welcher beim Einsatz der elektrochemischen Desinfektion als Einzelverfahren resultierte, innerhalb des kontinuierlich betriebenen UV/Elektrolyse-Hy-

bridmoduls gesenkt werden kann. Dies könnte durch eine verbesserte Auswahl des Elektrodenmaterials und prinzipiell auch durch ein anderes Wirkprinzip der UV/Elektrolyse, welches zur Verringerung der Konzentration des Hauptdesinfektionsmittels innerhalb der elektrochemisch erzeugten Gesamtoxidantien (GOM) führt, erzielt werden. Daher wurden zunächst verschiedene Elektrodenmaterialien anhand der Produktionsrate von freiem Chlor und von Gesamtoxidantien in einer Modelllösung ($c_{\text{Chlorid}} = 150 \text{ mg L}^{-1}$, $c_{\text{Sulfat}} = 480 \text{ mg L}^{-1}$) charakterisiert. Es wurde festgestellt, dass die Produktionsrate von freiem Chlor und von Gesamtoxidantien an Partikel-BDD-Elektroden mit $80\ldots 92 \text{ mg (Ah)}^{-1}$ am größten und um den Faktor $7\ldots 8$ höher als an Dünnschicht-BDD-Elektroden ist. Auch an MOX-Elektroden war die Produktionsrate von freiem Chlor und von Gesamtoxidantien mit $70\ldots 80 \text{ mg (Ah)}^{-1}$ hoch. Weiterhin wurde festgestellt, dass die Photo- und Dunkelreaktivierung ($t = 24\ldots 72 \text{ h}$) bei einer Konzentration an Gesamtoxidantien von $0,5\ldots 0,6 \text{ mg L}^{-1}$ in einem pH-Bereich zwischen 5,7 und 8,1 und einem Temperaturbereich zwischen $10 \text{ }^{\circ}\text{C}$ und $30 \text{ }^{\circ}\text{C}$ vollständig unterbunden wird ($c_{\text{TSS}} = 8\ldots 11 \text{ mg L}^{-1}$). Anders als bei der elektrochemischen Desinfektion als Einzelverfahren, bei dem freies Chlor das Hauptdesinfektionsmittel innerhalb der Gesamtoxidantien darstellt, wurde hier kein freies Chlor direkt nach der Elektrolysezelle beobachtet, da es in zu geringer Konzentration erzeugt und somit vor allem durch die organische Wassermatrix (DOC, TSS) vollständig verbraucht wurde. Demnach können reversibel UV-geschädigte *E. coli*-Bakterien schon bei einer geringen Konzentration von elektrochemisch erzeugten Gesamtoxidantien, bei der kein freies Chlor nachweisbar ist, irreversibel zerstört und vollständig abgetötet werden. Somit wird durch die Anwendung der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik eine synergistische germizide Wirkung erzielt, wobei bakterielle Reaktivierungsprozesse in UV-behandeltem Abwasser unterbunden werden. Dabei wurde der geringste Energieverbrauch an den MOX-Elektroden ermittelt. Dieses Ergebnis sowie die Feststellung, dass die unerwünschten Nebenprodukte Chlorat und Perchlorat an MOX-Elektroden im Gegensatz zu Dünnschicht-BDD- und Partikel-BDD-Elektroden nicht beobachtet wurden, führten zu dem Schluss, dass sich der Einsatz dieser Elektroden innerhalb des kontinuierlich betriebenen UV/Elektrolyse-Hybridmoduls als vorteilhaft erweist. Daher erfolgten weitere spezifische Untersuchungen unter Verwendung der MOX-Elektroden.

Insgesamt kann anhand der Untersuchungsergebnisse geschlossen werden, dass ausschließlich die Ergänzung der UV-Desinfektion durch die Elektrolysestufe eine zuverlässige und nachhaltige (irreversible Schädigung der Bakterien) Keimzahlreduzierung gewährleistet und die Reaktivierung reversibel geschädigter Coliforme verhindert. Selbst bei einer hohen Konzentration an abfiltrierbaren Stoffen von 75 mg L^{-1} kann die Reaktivierung der *E. coli* ($c_{\text{GOM}} = 1,8 \text{ mg L}^{-1}$) und bis zu einer TSS-Konzentration von 32 mg L^{-1} die Reaktivierung der Gesamcoliforme (außer *E. coli*, $c_{\text{GOM}} = 1,0 \text{ mg L}^{-1}$) bei hohen Ausgangskeimzahlen von $2\ldots 3 \cdot 10^5$ pro 100 mL vollständig unterbunden werden. Die Anwendung der UV-Elektrolyse-

Hybridtechnik wird jedoch durch steigende Partikelkonzentrationen und Fäkalbelastungen (*E. coli*-Ausgangskonzentration) limitiert. So verdreifacht sich die erforderliche Gesamtoxidantienkonzentration von 0,5...0,6 mg L⁻¹ auf 1,8 mg L⁻¹ bei einer sieben- bis neunfachen Erhöhung der TSS-Konzentration von 8...11 mg L⁻¹ auf 75 mg L⁻¹. Dies ist auf den verbesserten bakteriellen Schutz bei hohen Partikelkonzentrationen und einem zunehmenden Verbrauch der Oxidantien durch die Partikel zurückzuführen. Der erhöhte Bedarf an elektrochemisch erzeugten Oxidantien zur Vermeidung der bakteriellen Reaktivierung führt zu einer erheblichen Erhöhung des elektrischen Ladungs- und Energieeintrags. Des Weiteren zeigte sich, dass die Vermeidung der *E. coli*-Photoreaktivierung (4200 Lux) bei einer Ausgangskonzentration von 933 *E. coli* pro 100 mL eine Gesamtoxidantienkonzentration von 0,4 mg L⁻¹, dagegen von 0,67 mg L⁻¹ bei Erhöhung der Ausgangskonzentration der *E. coli* um 2,4 log-Stufen erfordert. Zur Vermeidung der Dunkelreparatur erhöht sich die Gesamtoxidantienkonzentration von 0,2 mg L⁻¹ auf 0,5 mg L⁻¹, wenn die Ausgangskonzentration um 2,4 log-Stufen zunimmt. Die Auslegung des Hybridreaktors sollte daher maßgeblich über die Elektrolysestufe erfolgen. Dabei kann die Erhöhung des Ladungseintrages einerseits durch Verringerung des Volumenstroms bei konstanter Stromstärke und andererseits durch Erhöhung der Stromstärke bei konstantem Volumenstrom realisiert werden. Ersteres führt zwar zugleich zur Zunahme der UV-Bestrahlungsdosis ($H > 400 \text{ J m}^{-2}$), jedoch nicht zwangsläufig zur Erhöhung der UV-Desinfektionsleistung (Stagnation der UV Desinfektionsleistung kann durch die Elektrolysestufe kompensiert werden). Letzteres ist bezüglich der Tatsache, dass einerseits die Stromdichte einen limitierenden Elektrodenparameter darstellt und andererseits die Erhöhung der Stromdichte eine Zunahme der resultierenden Spannung und somit eine Erhöhung des Energieverbrauchs verursacht, als nachteilig anzusehen. Demzufolge sollte die Erhöhung des elektrischen Ladungseintrages durch die Verringerung des Volumenstroms erfolgen. Jedoch muss hier gleichzeitig auf die hydraulischen Verhältnisse geachtet werden. Insgesamt stellt die UV/Elektrolyse-Hybridtechnik bei TSS-Konzentrationen im Bereich von 11...32 mg L⁻¹ eine energieeffiziente Methode (0,17...0,24 kWh m⁻³, MOX-Elektroden) zur Herstellung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser dar, wobei dessen sichere Verwendung und Lagerung gewährleistet wird. Dabei erfüllt das Brauchwasser die Qualitätsanforderungen für eine Vielzahl von Nutzungsarten, angefangen von der landwirtschaftlichen Bewässerung, über innerstädtische/häusliche Anwendungen bis hin zur Freizeitnutzung. Zudem werden die Anforderungen der Ablaufklasse +H (100 Fäkalcolifforme (*E. coli*) pro 100 mL) erfüllt. Weiterhin geht aus den Untersuchungen zur unerwünschten Belagbildung durch Biofouling auf Quarzglasoberflächen (Versuchsdauer = 5,5 Monate) hervor, dass diese bereits bei einer Gesamtoxidantienkonzentration von 1 mg L⁻¹ vermieden werden kann. Dies führte dazu, dass die geringe UV-Durchlässigkeit der Quarzglasoberflächen mit Biofilmbewuchs von 40 % auf 62...66 % ohne Biofilmbewuchs erhöht werden

konnte. Die leichte Trübung der Quarzglasoberflächen, die mit elektrochemisch erzeugten Oxidantien in Kontakt waren, kann auf geringfügiges Scaling zurückgeführt werden. Es ist aber auch denkbar, dass diese durch membrangeschädigte bzw. abgestorbene Zellen verursacht wird. Dies kann in der Praxis zwar zur Verringerung der UV-Desinfektionsleistung führen. Dennoch besteht die Möglichkeit, diese durch die synergistische Wirkung der UV/Elektrolyse zu kompensieren. Generell lässt sich hier für die Praxis ableiten, dass die Quarzglashüllrohre der UV-Strahler regelmäßig mit Oxidantien (GOM) in einer Konzentration von mindestens 1 mg L^{-1} umspült werden sollten, um die Reinigungsintervalle des UV/Elektrolyse-Hybridreaktors zu erhöhen und somit einen wartungsarmen, sicheren Dauerbetrieb zu gewährleisten. Turbulente Umspülungen könnten dabei zudem dazu beitragen, dass bereits gebildete leichte Trübungen der Quarzglashüllrohre entfernt werden. Dies kann routinemäßig über Nacht erfolgen, wenn der UV-Reaktor nicht in Betrieb ist. In dieser Zeit könnte der UV-Reaktor mit einer elektrochemisch erzeugten Oxidantienlösung befüllt sein, die bei Inbetriebnahme des UV-Reaktors wieder abgelassen wird.

In Tabelle 4.1 sind abschließend die Einzelverfahren UV-Desinfektion und Elektrolyse der Verfahrenskombination hinsichtlich praxisrelevanter Parameter bewertend gegenübergestellt, wobei die Vorteile der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik anhand des Bewertungsrankings deutlich werden.

4. Zusammenfassung der Ergebnisse und Diskussion

Tab. 4.1: Bewertungsranking hinsichtlich praxisrelevanter Parameter für die UV-Desinfektion, elektrochemische Desinfektion und UV/Elektrolyse-Hybridtechnik

Merkmal	UV-Desinfektion	Elektrochemische Desinfektion	UV/Elektrolyse-Hybridtechnik
Energiebedarf (kWh m ⁻³)	+++	+	+++
Wartungsaufwand/Reinigungsintervall	-	++	++
Bildung von DNP ¹	+++	-	-
Automatisierbarkeit	+++	+++	+++
Kompatibilität zu Kleinkläranlagen	+++	+++	+++
Desinfektionswirkung			
Bakterien: Fäkalcoliforme (<i>E. coli</i>)	+++	+++	+++
Viren ²⁻⁵	++	+	++ ⁶
Protozoen ²⁻⁵	+++	-	+++ ⁶
Wiederverkeimungsneigung	-	+++	+++
Kompensation von Leistungseinbrüchen			
Transmission (254 nm)	-	+	++
abfiltrierbare Stoffe	-	+	++
Temperatur (°C)	+++	-	+++
pH	+++	-	+++
Nutzung des desinfizierten Abwassers			
Brauchwasser (Haushalt, innerstädtische Nutzung, Freizeit)	-	++	++
Bewässerungswasser	+	++	++
Versickerung, Direkteinleitung	+++	++	+++
Fazit Σ[+]	30	24	39

Vorteil: mittel, hoch, sehr hoch: +; ++; +++

Nachteil: -

¹ Desinfektionsnebenprodukte

² DWA, 2008; ³ Jeong et al., 2009; ⁴ Clarke, 2011; ⁵ Diao et al., 2003 (Literaturverzeichnis Kapitel 2.3)

⁶ potentieller Vorteil

5. Ausblick

Die erzielten Forschungsergebnisse der vorliegenden Dissertation leisten einen Beitrag zur Anwendbarkeit alternativer Desinfektionsverfahren zur geplanten/geregelten Wiederverwendung von biologisch gereinigtem Abwasser, die vor allem im letzten Jahrhundert zum internationalen Leitgedanken eines schonenden und nachhaltigen Umgangs mit der Ressource Wasser wurde. Die Effizienz der Wassernutzung wird durch die Etablierung eines sekundären Brauchwasserkreislaufes gesteigert. Dabei erlaubt das dezentrale Abwassermanagement in vielen Fällen die Verkleinerung und Schließung von Kreisläufen und ist somit aus Sicht der Nachhaltigkeit von großer Bedeutung. Zur Gewinnung von Brauchwasser ist eine Desinfektion erforderlich. Dabei ist die Herausforderung an alternative, neuartige Verfahren, diese trotz komplexer und hoher Anforderungen an eine effiziente und zuverlässige Desinfektionsleistung bei geringer bzw. moderater Bildung von unerwünschten Desinfektionsnebenprodukten, zudem technisch einfach, flexibel anwendbar, platzsparend und ökonomisch bei geringen bis moderaten Betriebs- und Investitionskosten zu realisieren. Mit der Entwicklung und Untersuchung der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik können diese Anforderungen überwiegend erfüllt werden. Durch den Synergieeffekt können verschiedene Nachteile der Einzelverfahren (UV: u. a. bakterielle Reaktivierung, Biofouling auf Schutzrohren der UV-Strahler; Elektrolyse: u. a. pH-, temperaturabhängige Desinfektionsleistung) kompensiert werden, wodurch das Brauchwasser sicher eingesetzt und gelagert werden kann. Diese insgesamt positiven Ergebnisse sollten zu weiteren Forschungen auf diesem Gebiet motivieren. So könnte ein insgesamt breiteres Spektrum an Indikatororganismen bzw. Pathogenen (Viren, Bakteriensporen, Protozoen und (Oo)zysten usw.), die gegenüber der UV-Desinfektion und der elektrochemischen Desinfektion als Einzelverfahren weniger sensitiv sind, durch die synergistische germizide Wirkung der UV/Elektrolyse-Hybridtechnik abgetötet werden. Dies wurde bis zum jetzigen Zeitpunkt von keiner Forschergruppe untersucht. Weiterhin sind Feldversuche hinsichtlich der Langzeitstabilität sowie des Reinigungs- und Wartungsaufwandes erforderlich. Erste Untersuchungen des Kooperationspartners Bergmann Clean Abwassertechnik GmbH hierzu bestätigen nicht nur die Laborergebnisse, sondern zeigen zudem eine hohe Betriebssicherheit des UV/Elektrolyse-Hybridmoduls bei einem geringen Energieverbrauch von $0,2 \text{ kWh m}^{-3}$. Auch die elektrochemische Desinfektion wird weiterhin in Langzeitstudien als Einzelverfahren durch die Firma Bergmann Clean Abwassertechnik GmbH aufbauend auf den erzielten Laborergebnissen getestet. Von großem Vorteil für beide Verfahren sind zudem der geringe Platzbedarf der Anlagen und eine mögliche Automatisierbarkeit durch Nutzung von Mess- und Regeltechnik.

Unerwünschte organische und anorganischen Desinfektionsnebenprodukte sollten sowohl bei dem Einsatz der elektrochemischen Desinfektion als auch der UV/Elektrolyse von biologisch gereinigtem Abwasser, das wiederverwendet oder direkt in Gewässer eingeleitet wer-

den soll, in weiteren Studien untersucht werden. Dabei sollte weiterhin die Minimierung der Desinfektionsnebenproduktbildung vor allem durch die Wahl des Elektrodenmaterials unter den erforderlichen verfahrensspezifischen Bedingungen sowie der Verbleib der unerwünschten Desinfektionsnebenprodukte im Sekundärkreislauf untersucht werden.

Generell wird der Bedarf an zukunftsorientierten, innovativen Lösungsstrategien zur Rückgewinnung und Wiederverwendung von Abwasser vor allem in den ariden, strukturschwachen Regionen und in den immer größer werdenden urbanen Ballungszentren der Erde auch in den nächsten Jahren stark zunehmen. Der Entwicklung von innovativen Desinfektionstechnologien kommt daher eine zunehmend wichtige Bedeutung zu. Da Hybridverfahren effiziente Methoden zur Gewinnung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser darstellen können, sollten diese weiterhin umfangreich erforscht werden. Dabei ist generell die Synergie aus elektrischem Strom bzw. elektrischem Feld und einfachen, kostengünstigen Desinfektionsmethoden viel versprechend. So stellt neben der untersuchten UV/Elektrolyse-Hybridtechnik die Erweiterung von Festbettfiltrationsverfahren (Langsandsandfiltration) durch ein elektrisches Feld einen interessanten Lösungsansatz zur Erhöhung der Reduktionsleistung von Pathogenen (und zusätzlich von Partikeln) dar (Haaken et al. 2013a, 2013b, 2013c, 2014).

6. Verzeichnis weiterer Publikationen auf dem Gebiet der Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser zur Gewinnung von Brauchwasser

Haaken, D., Dittmar, T., Schmalz, V., Worch, E., Ilian, J., Bergmann, M. (2014)

Einsatz von modularen Low-Tech-Filtersystemen zur dezentralen Gewinnung von Brauchwasser und Nährstoffen, 21. Innovationstag Mittelstand des Bundesministeriums für Wirtschaft (BMWi), *Posterbeitrag*

Haaken, D., Schmalz, V., Dittmar, T., Worch, E., Ilian, J., Triller, W., Bergmann, M. (2013a)

Verfahren und Vorrichtung zur Desinfektion und Filtration von Wässern, *Deutsche Patentanmeldung*

Haaken, D., Dittmar, T., Schmalz, V., Worch, E. (2013b)

Dezentrale Gewinnung von Brauchwasser - Einsatz elektrischer Felder bei der Langsam-sandfiltration zur Hygienisierung von biologisch gereinigtem Abwasser, *Vom Wasser* **111**, 35-37

Haaken, D., Schmalz, V., Dittmar, T., Worch, E. (2013c)

Disinfection of secondary effluents by using slow sand filtration combined with electric fields - contribution for direct reuse of domestic wastewater, FILTECH 2013, *Abstract book*, 138

Haaken, D., Dittmar, T., Schmalz, V., Ilian, J., Worch, E. (2012a)

Low-tech-Biofilter in der dezentralen Abwasserbehandlung – Verbesserung hygienischer und chemischer Ablaufparameter zur Gewinnung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser, Jahrestagung der Wasserchemischen Gesellschaft, *Tagungsband*, 154-157

Schmalz, V., Dittmar, T., Haaken, D., Worch, E. (2012)

Verbesserung der Anwendbarkeit der Chlordioxidbestimmung unter Verwendung des LGB-Reagenz durch Nutzung einer alternativen Kalibrationsmethodik, Jahrestagung der Wasserchemischen Gesellschaft, *Tagungsband*, 229-233

Haaken, D., Dittmar, T., Worch, E. (2011)

Erweiterte dezentrale Abwasserbehandlung - UV/Elektrolyse-Hybridtechnik zur Gewinnung von Brauchwasser aus biologisch gereinigtem Abwasser, TERRATEC 2011, *Posterbeitrag und Exponat des Gemeinschaftsstandes: Forschung für die Zukunft Mitteldeutschland*

Haaken, D., Schmalz, V., Dittmar, T., Ilian, J., Worch, E. (2010)

Grenzen der UV-Desinfektion von biologisch gereinigtem Abwasser in der dezentralen Abwasserbehandlung, Jahrestagung der Wasserchemischen Gesellschaft, *Tagungsband*, 144-148

Haaken, D., Köhler, M., Schmalz, V., Dittmar, T., Ilian, J., Worch, E. (2009)

Anwendung der elektrochemischen Hygienisierung - Betriebsweise und verfahrenstechnische Bemessungsparameter für eine dezentrale Kleinkläranlage, Jahrestagung der Wasserchemischen Gesellschaft, *Tagungsband*, 122-126

Schmalz, V., Dittmar, T., Haaken, D., Worch, E. (2009)

Electrochemical disinfection of biologically treated local sewage by using boron-doped diamond (BDD) electrodes - contribution for direct reuse of domestic wastewater, *Water Res.* **43**, 5260-5266

Schmalz, V., Dittmar, T., Haaken, D., Worch, E. (2008)

Einsatz von bordotierten Diamantelektroden in der Abwasserbehandlung - elektrochemische Hygienisierung von biologisch gereinigtem Abwasser, Jahrestagung der Wasserchemischen Gesellschaft, *Tagungsband*, 103-107